



HAL
open science

Analyse multi-échelle des effets de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique et les mécanismes d'endommagement de composites à renfort de chanvre

Quentin Drouhet

► **To cite this version:**

Quentin Drouhet. Analyse multi-échelle des effets de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique et les mécanismes d'endommagement de composites à renfort de chanvre. Autre. ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique - Poitiers, 2023. Français. NNT : 2023ESMA0013 . tel-04434517

HAL Id: tel-04434517

<https://theses.hal.science/tel-04434517>

Submitted on 2 Feb 2024

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.

THESE

Pour l'obtention du Grade de
DOCTEUR DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DE MECANIQUE ET
D'AEROTECHNIQUE

(Diplôme National – Arrêté du 25 mai 2016 Modifié par l'Arrêté du 26 Août 2022)

Ecole Doctorale n°651 :
MIMME Mathématiques, Informatique, Matériaux, Mécanique, Energétique

Secteur de Recherche :
Mécanique des Solides, des Matériaux, des Structures et des Surfaces

Présentée par :

Quentin DROUHET

(manuscrit provisoire)

Analyse multi-échelle des effets de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique
et les mécanismes d'endommagement de composites à renfort de chanvre

Directrice de thèse : Fabienne TOUCHARD

Co-encadrante : Laurence CHOCINSKI

Soutenance prévue le 11/12/2023

devant la Commission d'Examen

JURY

Rapporteurs :

Bois Christophe, Professeur des Universités, I2M, Talence

Fayolle Bruno, Professeur des Universités, Laboratoire PIMM, Paris

Membres du jury :

Céline Amandine, Maîtresse de Conférence, Université de Nantes, Saint-Nazaire

Joannès Sébastien, Chargé de Recherche HDR, Mines Paris Université PSL, Paris

Vieille Benoit, Professeur des Universités, INSA Rouen Normandie, Rouen

Touchard Fabienne, Directrice de recherche, ENSMA, Poitiers

Chocinski Laurence, Maîtresse de Conférence, ENSMA, Poitiers

Invités :

Gérard Pierre, Ingénieur R&D, Arkema, Lacq

Naguib Hani, Professeur des Universités, Université de Toronto, Canada

Remerciements

Ces travaux de thèse ont été effectués au sein du département Physique et Mécanique des Matériaux de l'Institut Pprime (ENSMA) que je remercie pour son accueil chaleureux. Je remercie également l'école doctorale MIMME, dirigée par M. Damien Halm à l'ENSMA, pour l'accompagnement tout au long de ces trois années de thèse et son soutien sans faille.

Un grand merci aux rapporteurs Bruno Fayolle et Christophe Bois pour leur travail qui a permis une riche discussion lors de la soutenance de thèse. Après deux ans d'IUT, un PFE et quelques conférences passées ensemble, j'ai hâte de continuer à travailler avec toi Christophe dans le cadre de la poursuite de ma carrière. Merci également aux examinateurs Benoit Vieille, Amandine Céline et Sébastien Joannès d'avoir répondu présent pour évaluer mon travail de manière constructive. Je remercie Pierre Gérard pour avoir fait le déplacement afin d'assister à ma soutenance de thèse, je ne doute pas qu'on sera amené à discuter de ma thèse et d'autres projets très prochainement. Enfin, bienvenu au professeur Naguib Hani à l'Institut Pprime et merci d'avoir accepté d'évaluer mon travail de thèse, ce fut un réel plaisir de vous rencontrer.

Je tiens tout particulièrement à remercier mes directrices de thèse Fabienne Touchard et Laurence Chocinski. Merci Fabienne pour m'avoir transmis la passion du chanvre, la plante du futur ! Merci à vous pour votre bonne humeur, votre (fort) caractère et votre sens de l'humour irremplaçable ! Merci Laurence également pour ta bonne humeur, ton attention de tous les jours pour que tout se passe pour le mieux et ta méticulosité à toutes épreuves ! Conseil de docteur : une à deux tasses d'infusion au chanvre contre le stress et tout ira pour le mieux ! Merci à toutes les deux pour m'avoir fait confiance.

Merci également à l'ensemble des personnels de l'équipe ENDO, qui, par leur collaboration et leur travail sans faille, m'a grandement aidé à réaliser ces travaux de thèse. Je pense tout particulièrement à Médé, « Monsieur Sécurité » en toutes circonstances (manipulations expérimentales et manifestations) ! Merci à David Mellier et Amélie Caradec pour les quelques centaines d'heures d'acquisitions microtomographiques et microscopiques qui ont bien remplies le réseau partagé (désolé Gérald et merci !). Merci à Mikael Gueguen et Azdine Nait-Ali pour les différentes formations et les coups de mains pour le traitement de toutes ces images. Azdine, merci pour ces 4 ans d'ENSMA, je t'en veux plus trop. Merci à Damien Marchand pour la MUTTOM, de la tomographie sous chargement, c'est la classe ! Côté fabrication, la production presque industrielle des innombrables éprouvettes a été effectué sous la direction de notre cher résinologue-chanvrisme poitevin Bastien Robert, merci pour ces séances fabrication/café ! Le travail d'usinage de Céline Dubois nous a permis d'obtenir des éprouvettes de qualité, toujours dans les temps, malgré nos exigences parfois importantes, merci à toi ! Merci à Jacques Lefort pour la gestion de l'équipe usinage. Merci également au personnel administratif représenté par Valérie et Karine pour le soutien et l'accompagnement, notamment en fin de thèse (imprimante HS deux jours avant l'impression de mon manuscrit, merci Karine pour l'intervention !). Merci également à Francine pour la gestion de mes nombreux déplacements dans le cadre de ma thèse. Au compteur, une bonne quarantaine de tickets de restaurant, deux conversions de devise, des tickets Flixbus (oui oui, ça fonctionne),

de trains, de métro etc. remboursés toujours au centimes près ! Merci également aux autres permanents, pour les TPs, TDs, ou les discussions autour d'un café : Véronique, Kiki, Gilbert, Guillaume, Florence, Samuel, Jonathan, Damien, Loïc, Yves, Carole, Sylvie... Aux personnels de l'équipe ENDO s'ajoutent les stagiaires Justine, Zakariya et Ramon, qui m'ont retiré quelques épines du pied, en des temps courts, mais efficaces !

Merci également à tous les doctorants de l'équipe ENDO mais aussi à ceux d'autres équipes/laboratoires ! Côté SP2MI, je remercie François, Abdel-Salem et Fanny pour l'organisation des journées des doctorants dès la première année de thèse ! On n'aura pas eu Jamy, mais on s'en est super bien sorti ! Merci aux anciens ENSMA et Kaârf pour les pauses cafés et les soirées en ville. Je tiens à remercier aussi l'ATEM, la meilleure, celle présidée par Monsieur le Président Julien Prouteau, merci d'avoir craqué pour être président. Merci également à Marjolaine et Benoit pour leur bonne humeur et leur efficacité. Je n'oublie évidemment pas Théotime, qui a eu l'excellente idée de me rejoindre en thèse ! J'ai redécouvert un Théotime sur qui on peut toujours compter, copain de coinche, de manif, de sortie, de vélo, d'engagement écolo et j'en passe ! Courage, tu arrives au bout ! Un grand merci à mes compagnons de bureaux : le B008, Luciana, Benoit, Prasad, Thomas et Hicham, deux ans de thèse, du mouvement, et des moments que je n'oublierai pas et le C101, Mitia, Florent, Alla, Julie, Manu' et Gu', le « donjon », l'année de la rédaction, avec les meilleurs, les fléchettes, quelques fous rires mais toujours studieux, au bureau en tout cas ! Une découverte également aux abords d'un rond-point, un co-champion du monde de coinche de l'équipe endo du laboratoire Pprime édition hiver-été 2023... Merci Abel et allez Bègles (cette année, c'est la bonne) ! Et pour n'oublier personne, merci à tous les participants des barbecues du dimanche, vous vous reconnaissez !

Je souhaite enfin bon courage à l'ensemble des doctorants arrivés au fur et à mesure. Merci à vous pour les discussions à la cafet', au five, etc.

Merci à mes parents pour m'avoir fait confiance dans les moult tergiversations qui ont fait de mon aventure post-bac un réel parcours du combattant. Je vous en suis extrêmement reconnaissant et ça a fini par payer ! Merci à mes frères et à ma famille pour le soutien. Merci aussi à Jacky et Evelyne pour le soutien indéfectible et les parties de Scrabble endiablées ! J'ai également une pensée pour mes grands-parents qui sont ou auraient été fiers de mon parcours.

Merci Mousse, toujours prêt pour une séance de ronrons/gratouilles quand on en a besoin, ou quand tu réclames à manger...

Et la personne la plus importante pour la fin, Julie. S'il existait un mot pour « merci * 1000 », je l'utilisais pour toi. Mille mercis donc pour ces trois ans à mes côtés, merci aussi pour les cinq années précédentes évidemment. Merci pour le soutien, merci à tes listes « +/- » qui ont donné un large avantage à faire cette thèse par rapport à continuer un travail à une heure de la maison, merci pour ta patience dans les moments plus compliqués, merci de m'avoir permis de m'évader lorsque j'en avais besoin, merci pour ta patience, même si j'ai déjà dit, et merci de m'avoir donné la force de ma battre jusqu'au bout pour accomplir ces trois années de travail. Je t'en serai toujours reconnaissant, alors maintenant, rejoins-moi vite à Bordeaux qu'on profite de chaque instant !

Table des matières

Introduction.....	9
I. État de l’art.....	13
I.1 Les composites à renfort végétal	14
I.1.1 Le marché des composites face aux défis climatiques.....	14
I.1.2 Le choix du chanvre	15
I.1.3 La problématique de l’interface	19
I.2 Vieillissement hydrique.....	24
I.2.1 Phénomènes de diffusion	24
I.2.2 Influence sur le comportement mécanique et les mécanismes d’endommagement .	29
I.3 Fatigue hydrique	35
Bilan sur l’état de l’art.....	46
II. Matériaux et techniques employées.....	47
II.1 Fabrication des composites.....	48
II.1.1 Résines.....	48
II.1.2 Éprouvettes monofilamentaires	52
II.1.3 Composites tissés.....	52
II.2 Méthode pour la fatigue hydrique	56
II.2.1 Dispositif expérimental.....	56
II.2.2 Formulation de la diffusion en fatigue hydrique.....	57
II.3 Moyens de caractérisation mécanique et mesures des déformations.....	59
II.3.1 Traction monotone et à chargements répétés progressifs.....	60
II.3.2 Corrélation d’images numériques (2D et 3D).....	63
II.4 Méthodes d’analyse des endommagements	66
II.4.1 Suivi <i>in-situ</i> par émission acoustique	66
II.4.2 Microscopies optique et électronique à balayage	69
II.4.3 Microtomographie à rayons X.....	71
Bilan sur les matériaux et les techniques employées.....	80
III. Caractérisation mécanique multi-échelle des matériaux non vieillis	81
III.1 Fil de chanvre	82
III.1.1 Préparation des essais de traction sur fils.....	82
III.1.2 Comportement mécanique des fils de chanvre.....	83
III.2 Résines.....	84

III.3 Composites tissés.....	85
III.3.1 Propriétés mécaniques macroscopiques	86
III.3.2 Évolutions du module sécant	88
III.3.3 Analyse des endommagements	90
III.4 Interface.....	98
III.4.1 Essais de fragmentation	98
III.4.2 Mesure des champs de déformation par corrélation d'images numériques	102
Bilan sur la caractérisation mécanique multi-échelle des matériaux non vieillis.....	116
IV. Préambule à la fatigue hydrique : étude du vieillissement hydrothermique.....	119
IV.1 Influence de la température de l'eau sur le comportement à l'absorption des composites	120
IV.1.1 Courbes d'absorption en eau.....	120
IV.1.2 Cinétique d'absorption en eau	123
IV.2 Effet du vieillissement hydrothermique sur le comportement mécanique des composites	125
IV.2.1 Comportement en traction.....	125
IV.2.2 Propriétés mécaniques macroscopiques et comparaison avec le stockage ambiant	127
IV.2.3 Évolution du module sécant.....	130
IV.3 Effet du vieillissement hydrothermique sur les mécanismes d'endommagement	133
IV.3.1 Suivi par émission acoustique.....	133
IV.3.2 Observation des endommagements <i>post-mortem</i>	137
IV.4 Paramètres de fatigue hydrique	139
Bilan sur le préambule à la fatigue hydrique	142
V. Influence de la fatigue hydrique sur le comportement des composites	145
V.1 Absorption en eau.....	146
V.1.1 Courbes d'absorption en eau en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique	146
V.1.2 Cinétique d'absorption en eau sous fatigue hydrique	148
V.2 Modifications physiques liées à la fatigue hydrique	150
V.2.1 Température de transition vitreuse	150
V.2.2 Variations dimensionnelles.....	152
V.2.3 Lien entre variation dimensionnelle et coefficient de diffusion	156
V.3 Effet de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique des composites	158

V.3.1 Comportement en traction	158
V.3.2 Comparaison avec la fatigue thermique	163
V.3.3 Évolution du module sécant	167
Bilan sur l'influence de la fatigue hydrique sur le comportement des composites	172
VI. Analyse multi-échelle des endommagements après fatigue hydrique	175
VI.1 Influence des vieillissements hydriques sur l'endommagement des constituants des composites	176
VI.1.1 Fil de chanvre	176
VI.1.2 Matrices	179
VI.1.3 Interface	184
VI.2 Influence de la fatigue hydrique sur les mécanismes d'endommagement des composites	191
VI.2.1 Suivi <i>in-situ</i> par émission acoustique	192
VI.2.2 Faciès de rupture	200
VI.2.3 Quantification de l'endommagement par microtomographie	203
VI.3 Rigidification des composites	213
VI.3.1 Les composites $[\pm 45^\circ]_7$	213
VI.3.2 Les composites $[0^\circ/90^\circ]_7$	217
VI.3.3 Scénario d'endommagement des composites soumis à de la fatigue hydrique ...	223
Bilan sur l'influence multi-échelle de la fatigue hydrique sur l'endommagement des composites	226
Conclusion & Perspectives	229
Valorisation des résultats obtenus au cours de la thèse	234
Références	235

Introduction

Les fibres végétales sont utilisées depuis plusieurs milliers d'années. Les premières traces d'utilisation par l'Homme de fibres de lin remontent à l'ère du Paléolithique supérieur, qui s'étend de 40 000 à 10 000 av. J.-C. En effet, des morceaux de tissu de lin datant d'environ 30 000 av. J.-C., servant probablement à la fabrication de vêtements, ont été découverts entre 2007 et 2008 en Géorgie [1]. Durant l'époque de l'Égypte ancienne, la momification incluait l'utilisation de bandelettes en lin [2]. Les premières traces de culture de chanvre, découvertes en Asie centrale, dateraient d'environ 2900 av. J.-C. [3]. En 1455, Gutenberg imprima la première bible, la « B 42 », sur du papier de chanvre [4]. L'utilisation du chanvre dans le domaine nautique prend également de l'ampleur. Les corderies connaissent ainsi leur apogée entre le XVII^{ème} et le XIX^{ème} siècles notamment à travers la corderie Royale de Rochefort (1666-1862). À partir de 1860, la culture du chanvre disparaît progressivement en Europe et passe, en un siècle, de 60 000 tonnes produites par an en France à seulement 1000 tonnes dans les années 1960 [5]. Ce déclin s'illustre jusque dans le Poitou, où après 120 ans d'activité, la filature de Ligugé, près de Poitiers, ferme ses portes définitivement en 1976 [6]. Aujourd'hui, la corderie Palus, près de Brive-la-Gaillarde, est la seule à conserver une activité de fabrication de corde à base de fibres de chanvre en France. La production de chanvre repart à la hausse en Europe depuis quelques années, la France se positionnant même à la première place en tant que producteur [7]. Au-delà des applications agroalimentaires, de plus en plus de fibres de chanvre (courtes ou longues) sont présentes dans l'industrie du bâtiment (béton de chanvre, isolation, etc.) ou du transport (automobile, nautique, etc.).

Le retour de l'utilisation du chanvre dans l'industrie n'est probablement pas sans lien avec les enjeux environnementaux engendrés par le dérèglement climatique, et dont les conséquences deviennent de plus en plus visibles ces dernières années. Dans le cas des matériaux composites, le remplacement des renforts synthétiques de verre par des renforts naturels issus du végétal, tels que le lin ou le chanvre, est une première étape. Pour autant, en 2019, encore 88% des composites à matrice polymère étaient renforcés de fibres de verre [8]. Les derniers rapports du GIEC sont clairs, l'adaptation au dérèglement climatique nécessite des mesures de réduction des émissions de gaz à effet de serre, qui passe, entre autre, par l'utilisation raisonnée de matériaux plus respectueux de l'environnement [9]. La fabrication des matériaux composites doit donc s'adapter et envisager l'utilisation de renforts issus du végétal (lin ou chanvre) mais également l'emploi de résines polymères bio-sourcées et/ou recyclables.

Une problématique inhérente à l'utilisation de fibres végétales pour renforcer des résines polymères est le caractère hydrophile de ce type de fibres vis-à-vis de la matrice qui, comparativement, devient alors la phase hydrophobe du matériau composite. L'effet de cette différence d'hydrophilie sur les propriétés mécaniques et les mécanismes d'endommagement

a fait l'objet d'un certain nombre de recherches depuis une quinzaine d'années à l'Institut Pprime via l'étude des composites à renfort tissé de chanvre. Ce travail de thèse s'intègre ainsi dans la lignée des études précédentes. Dès 2008, Claire Bonnafous [10] débute une thèse qui porte sur l'étude du comportement en traction multi-échelle de composites chanvre/époxy. Davi S. de Vasconcellos [11] prend la suite pour étudier le comportement en fatigue mécanique de composites à renfort de chanvre et à matrice époxy avant et après impact. En 2016, c'est Amélie Perrier [12] qui termine sa thèse portant sur le comportement en traction de composites chanvre/époxy avant et après vieillissement hydrique par immersion dans l'eau à 20°C. Enfin, Romain Barbière [13] soutient sa thèse en 2020, dans laquelle il étudie le comportement en fatigue mécanique avant et après vieillissement hydrique par immersion dans l'eau à 20°C jusqu'à saturation. Une analyse de l'interface fil/matrice dans ce type de composite complète ses travaux.

Dans ce travail de thèse, on s'intéresse au comportement de ces matériaux lorsqu'ils sont soumis à de la fatigue hydrique, c'est-à-dire à une succession de phases d'immersion dans l'eau et de séchage, afin de simuler les variations climatiques que pourraient subir une structure utilisée en extérieur. De plus, trois résines différentes sont utilisées pour analyser le comportement de composites à renfort de chanvre élaborés avec une matrice biosourcée ou recyclable. Pour effectuer une analyse multi-échelle, les différents constituants des composites seront également soumis à des cycles de fatigue hydrique : les résines polymères seules, les fils de chanvre et des composites monofilamentaires pour tester l'interface fil/matrice. Les propriétés mécaniques en traction des constituants et des composites tissés seront ensuite déterminées et les mécanismes d'endommagement associés seront analysés en s'appuyant sur des techniques d'observation et de mesures *in-situ*. De plus, à des fins de comparaison, des composites à renfort de verre fabriqués avec une des résines époxy et avec un taux volumique de fibres voisin de celui des composites à renfort de chanvre subiront les mêmes vieillissements hydriques et les mêmes sollicitations mécaniques permettant ainsi une analyse comparative pertinente.

Six chapitres composent ce manuscrit de thèse. Le premier chapitre donne un état de l'art sur les avantages et les inconvénients de l'utilisation des composites à renfort de chanvre pour une application industrielle. Il s'agira ensuite de décrire les constituants couramment utilisés dans la fabrication de composites tissés. Les études portant sur la problématique liée au comportement de l'interface fil/matrice en présence d'humidité pour de tels composites seront citées. Enfin, les conséquences rencontrées dans la littérature des vieillissements hydriques, cycliques ou non, sur les propriétés mécaniques et les mécanismes d'endommagement seront détaillées.

Le deuxième chapitre est consacré à la présentation des matériaux et des techniques de mesures *in-situ* utilisées dans le cadre de ce travail de thèse. Pour permettre une analyse multi-échelle, les fils de chanvre, les différentes résines, les composites monofilamentaires et les composites tissés seront analysés séparément. Ainsi, la mise en œuvre de chaque type

d'éprouvette sera détaillée. Les deux orientations qui seront étudiées sont $\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$. La procédure développée dans le cadre de cette thèse pour le vieillissement par fatigue hydrique des matériaux étudiés sera également présentée. Enfin, les méthodes de caractérisation de l'endommagement basées sur différentes techniques expérimentales seront détaillées.

Le chapitre suivant présente les caractérisations mécaniques effectuées, pour les différentes échelles, sur les matériaux non vieillis. Ce chapitre permettra de mettre en application les différentes techniques de mesure et d'observation qui ont été utilisées tout au long de cette thèse. Les résultats obtenus serviront par la suite de référence vis-à-vis des matériaux vieillis par saturation en eau ou par fatigue hydrique. Une analyse détaillée permettant la caractérisation de l'interface fil/matrice dans un composite monofilamentaire par la technique de corrélation d'image numérique (2D et 3D) sera également présentée.

Le chapitre IV a pour but de déterminer les paramètres des cycles de fatigue hydrique. Pour cela, un vieillissement hydrique en immersion dans l'eau jusqu'à saturation à différentes températures sera d'abord appliqué. Les effets sur les propriétés mécaniques en traction et les mécanismes d'endommagement des composites seront analysés. Les résultats obtenus seront comparés à ceux du chapitre précédent.

Le chapitre V présente l'effet de la fatigue hydrique sur le comportement des composites tissés à renfort de chanvre et de verre. Il s'agira notamment d'étudier l'évolution des cinétiques d'absorption tout au long de la fatigue hydrique. Les variations dimensionnelles qui ont lieu dans les composites, à différents nombres de cycles de fatigue hydrique, seront également discutées. Ensuite, l'influence de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique des composites de l'étude sera présentée.

Le dernier chapitre portera sur l'étude des mécanismes d'endommagement qui ont lieu au cours de la fatigue hydrique sur chaque constituant et composite tissé étudié. L'endommagement dans les composites tissés sera analysé par différents moyens tels que l'émission acoustique et la microtomographie. Finalement, deux scénarios d'endommagement pour les composites tissés soumis à un vieillissement par fatigue hydrique seront proposés selon l'orientation du renfort.

Pour conclure, ce manuscrit se terminera par un bilan de l'ensemble des résultats obtenus et des perspectives qui pourraient être intéressantes pour compléter ces travaux de recherche.



I. État de l'art

Ce chapitre a pour objectif de présenter les avantages et les limitations des composites à renfort naturel pour une application industrielle. Une première partie discute du marché actuel des matériaux composites face aux enjeux climatiques et sociaux de demain. Ensuite, une description des constituants couramment utilisés dans l'élaboration de tels composites ainsi qu'une présentation de l'interface fibre/matrice seront faites. Puis, la problématique du vieillissement hydrique des composites à renfort végétal sera présentée en se focalisant sur les phénomènes de diffusion de l'eau et ses conséquences sur les propriétés mécaniques et les mécanismes d'endommagement engendrés. Enfin, les quelques publications qui concernent des composites soumis à de la fatigue hydrique seront détaillées.

I.1 Les composites à renfort végétal

I.1.1 Le marché des composites face aux défis climatiques

Ces dernières décennies, les polymères renforcés par des fibres synthétiques se sont durablement installés dans un grand nombre de domaines industriels (construction, transport, loisir, énergie, etc.). Selon l'étude du JEC Observer, la production mondiale de matériaux composites s'élevait à 12,1 mégatonnes en 2021, avec une prévision de production pour l'année 2026 de 15,5 mégatonnes (+22%) [14]. Le domaine dans lequel la dynamique de croissance est la plus importante est celui de l'énergie, qui passe notamment par le développement d'énergies nouvelles non-fossiles (éolienne, hydrolienne, etc.). En revanche, le domaine de l'aéronautique, qui a subi les conséquences de la crise Covid, a vu sa production de matériaux composites chuter de 45% entre 2019 et 2021. En 2019, l'Europe a produit 1141 kilotonnes de polymères renforcés par des fibres longues de verre alors que, 10 ans auparavant, la production européenne s'établissait à 815 kilotonnes, soit une augmentation de 40% et une part du marché de 88% [8], [15]. Quant aux composites à renfort naturel, qui représentaient seulement 11% de l'utilisation mondiale de composites en 2019, leur production doit significativement augmenter ces prochaines années, du fait du dérèglement climatique. Les derniers rapport du GIEC¹ nous alertent : réduire les conséquences du changement climatique passera nécessairement par une réduction des émissions des gaz à effet de serre, en adoptant des mesures de sobriété et en investissant massivement dans les énergies renouvelables [9]. Ainsi, la réduction des émissions de CO₂ peut passer par l'allègement des structures, via l'utilisation de matériaux composites. Afin d'avoir un impact significatif dès la fabrication de pièces composites, les résines polymères et les renforts employés doivent être bio-sourcés. Ainsi, il est important de s'intéresser à l'intégralité du cycle de vie d'un produit. Les matrices polymères thermoplastiques sont à privilégier, car elles sont recyclables, contrairement aux polymères thermodurs. Enfin, le développement d'énergies nouvelles ne peut s'affranchir d'une écoconception adaptée aux défis des prochaines décennies.

Les composites à renfort synthétique ou naturel prennent donc une part de plus en plus importante dans l'industrie. L'optimisation des procédés de fabrication et une meilleure prédiction du comportement mécanique de ce type de matériau a, entre autres, permis son essor dans de nombreux domaines. L'allègement des structures est une des principales motivations dans l'utilisation de matériaux composites. Associé à une matrice polymère adaptée, un choix judicieux parmi la grande variété de renforts permet de répondre à des sollicitations mécaniques plus ou moins complexes et à des vieillissements sur le long terme en milieu plus ou moins agressif. Dans le cadre de ces travaux, des renforts végétaux de chanvre et minéraux de verre ont été sélectionnés.

¹ Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat

I.1.2 Le choix du chanvre

La Figure I.1 propose une classification des différents types de renforts avec quelques exemples de fibres. Les fibres de verre classiquement utilisées en tant que renfort pour les composites sont celles du type E (E-glass). Elles sont principalement composées d'oxydes de silicium SiO_2 (55%), de calcium CaO (22%) et d'aluminium Al_2O_3 (14%). Les fibres de verre admettent de très bonnes propriétés mécaniques et une résistance électrique importante [16]. En revanche, la problématique d'extraction s'ajoute à celle de la puissance électrique nécessaire pour transformer le batch de matières premières en phase liquide et pour mettre en forme les fibres. En théorie, les fibres de verre peuvent être recyclées à l'infini, mais ce processus consomme aussi beaucoup d'énergie. Un levier d'action permettant la réduction de l'empreinte carbone d'un produit en matériau composite est donc d'utiliser des fibres moins énergivores durant, notamment, leur élaboration.

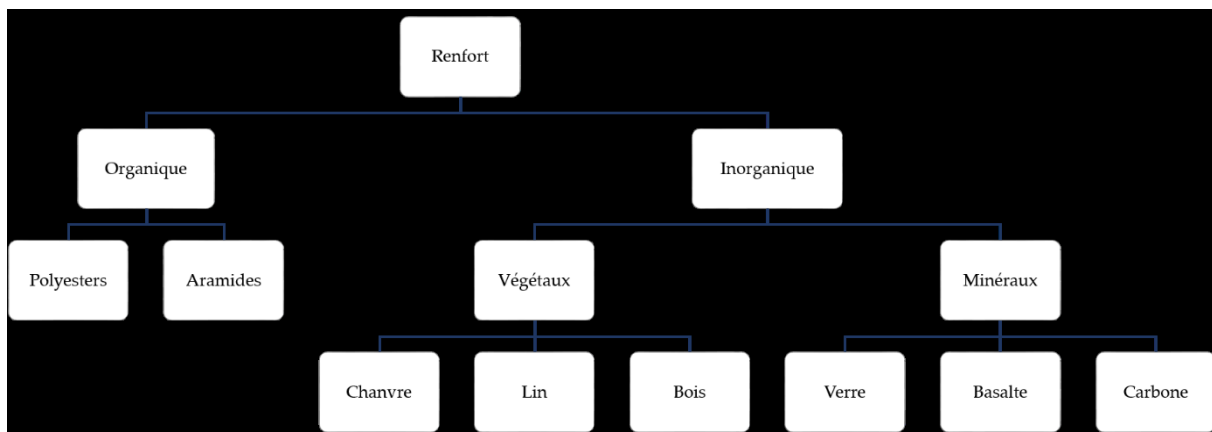


Figure I.1 : Classification et exemples de renforts d'origine organique et inorganique.

Les fibres naturelles issues des végétaux présentent un grand nombre d'avantages d'un point de vue impact environnemental. Elles sont naturellement renouvelables, recyclables et biodégradables [17]. Leur production nécessite moins d'énergie et leur manipulation est sans danger pour la santé. L'extraction des fibres végétales issues des tiges de la plante suit un protocole peu impactant pour l'environnement.

À une échelle microscopique, les fibres végétales ont toutes la particularité d'être un matériau composite en elles-mêmes. En effet, plusieurs couches sont identifiables dans la structure d'une fibre végétale généralement nommées couches S1, S2 et S3 tel que cela est décrit en Figure I.2 [18]. Ces couches sont constituées d'un ensemble de micro-fibrilles de cellulose orientées avec un angle d'environ 6° dans le cas des fibres de chanvre [19]. Le caractère composite de la fibre végétale vient du fait que cet ensemble de micro-fibrilles orientées est noyé dans une matrice principalement composée de lignine et d'hémicellulose [18]. Les performances mécaniques des fibres résultent principalement de la couche S2, la plus importante en proportion.

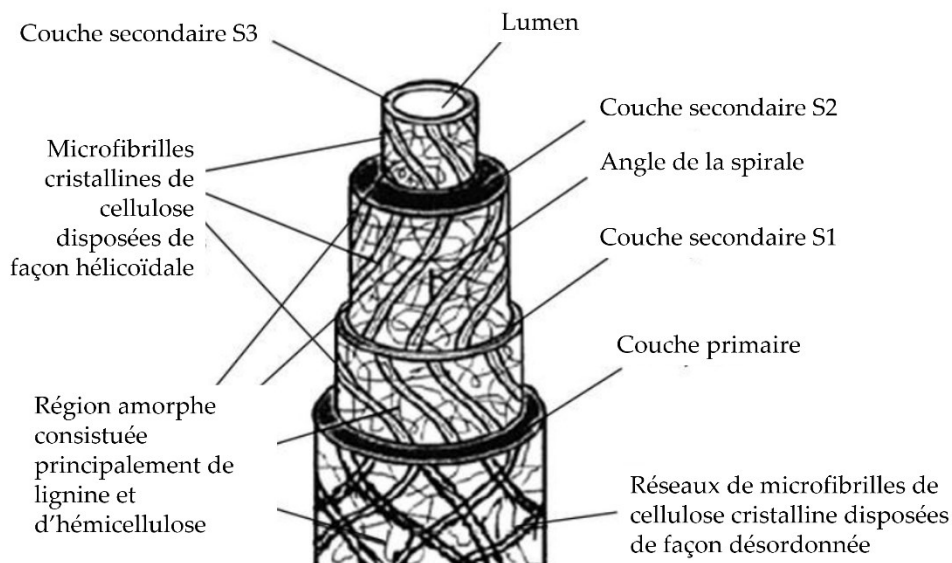


Figure I.2 : Schématisation de la structure composite d'une fibre végétale (d'après [18]).

Le Tableau I.1 présente certaines propriétés physiques et mécaniques des fibres végétales les plus couramment utilisées face à celles des fibres de verre [17]. La résistance en traction est bien plus élevée pour les fibres de verre. En revanche, du fait d'une densité deux fois inférieure, la rigidité spécifique des fibres végétales est équivalente à celle des fibres de verre, voire supérieure ou égale dans le cas des fibres de sisal, de lin et de chanvre.

Tableau I.1 : Densité et propriétés mécaniques des fibres de verre et de quelques fibres végétales (d'après [17]).

Propriétés	Verre	Chanvre	Lin	Jute	Sisal
Densité (-)	2,55	1,48	1,40	1,46	1,33
Résistance en traction (MPa)	2400	550-900	800-1500	400-800	600-700
Module d'Young (GPa)	73	70	60-80	10-30	38
Module d'Young spécifique (GPa)	29	47	26-46	7-21	29

Depuis 2010, la production de chanvre est en croissance. En effet, selon les statistiques de l'Organisation des Nations Unies pour l'alimentation et l'agriculture [20], la production mondiale de chanvre a été multipliée par trois entre 2010 et 2021 et par deux en Europe, principal producteur de chanvre au monde (Figure I.3). Sur l'année 2021, la France se trouvait en première position mondiale dans la production de chanvre, avec 143 kilotonnes produites, loin devant la Chine, avec 73 kilotonnes.

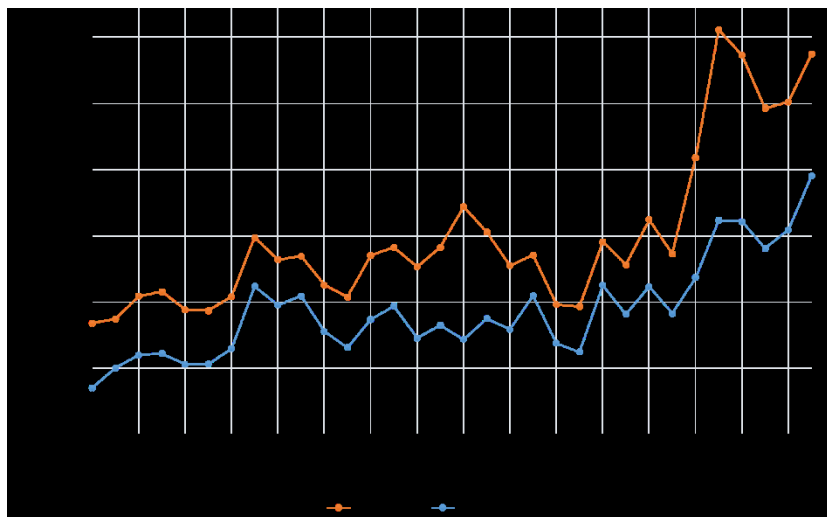


Figure I.3 : Quantité produite de chanvre entre 1990 et 2021 dans le monde et en Europe [20].

Le choix du chanvre a aussi été réalisé du fait de sa production neutre en émission de CO₂ [17]. De plus, le prix de production du chanvre est un argument en sa faveur. En effet, le prix de fabrication d'une tonne de chanvre se situe entre 700 et 1700 \$, alors que les fibres de verre et de lin se situent aux alentours des 2200 \$ la tonne [21]. La Figure I.4 représente les principales étapes du processus de fabrication des textiles de chanvre. La culture du chanvre est peu gourmande en eau et ne nécessite pas l'utilisation de pesticides. Deux à trois mois suffisent pour passer à l'étape de la récolte et du rouissage. Ce dernier consiste à laisser sécher pendant quelques semaines les tiges de chanvre au sol. Une fois le rouissage terminé, la décortication consiste à séparer les fibres de la tige de la plante. Le filage passe par deux étapes préliminaires : le teillage, qui consiste à éliminer les impuretés, et le cardage, qui consiste à démêler les fibres entre elles. Dans le cadre de ce travail de thèse, il a été choisi d'utiliser le chanvre sous la forme de tissu. Ce choix se justifie par la facilité de mise en œuvre des tissus lors de la fabrication des éprouvettes, qui a été réalisée par infusion sous vide (partie II.1.3). Une fois les bobines de fils obtenues, différents types de tissus, fonction de l'enchevêtrement des fils de chaîne et de trame (satin, sergé, toile, etc.) entre eux, peuvent être fabriqués. La masse linéique des fils, exprimée en tex, et la finesse du tissage donnent lieu à des tissus de différents grammages (g/m²).

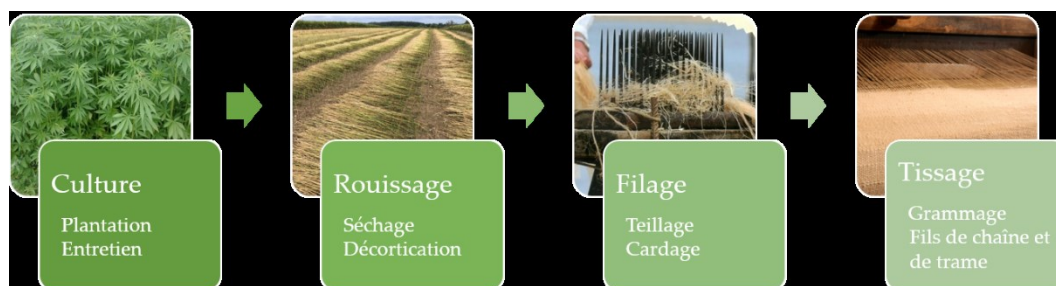


Figure I.4 : Principales étapes du processus de fabrication des tissus de fibres végétales, ici de chanvre.

Dans ce travail de thèse, afin de tester l'efficacité de ce type de composites pour des applications industrielles, le choix de solliciter les renforts dans la direction des fils de chaîne ($0^\circ/90^\circ$) et à $\pm 45^\circ$ de ceux-ci a été fait. Ainsi, ce choix donne accès aux propriétés mécaniques du composite à la fois en traction simple et en cisaillement. Dans un but comparatif, des tissus de verre classiquement utilisés dans l'industrie permettront de fabriquer de la même manière des composites à renfort de verre.

Afin d'obtenir des matériaux composites, les tissus doivent être imprégnés par un polymère. Un grand nombre de matrices polymères ont été développées ces dernières décennies. Deux grandes familles sont à distinguer : les résines thermodurcissables et thermoplastiques. Les résines thermodurcissables, couplées à un durcisseur et un accélérateur, permettent l'obtention de polymères thermodurs généralement rigides du fait de leur structure moléculaire tridimensionnelle stable. En revanche, ce type de polymère n'est pas recyclable. Quant aux polymères thermoplastiques, ils sont recyclables et thermoformables, ce qui facilite leur mise en forme pour la fabrication de pièces structurelles ou semi-structurelles. Leurs propriétés mécaniques sont généralement bien plus faibles que celles des polymères thermodurs, mais de plus en plus de résines thermoplastiques hautes performances existent (PEEK, Elium, etc.). Le Tableau I.2 présente les propriétés mécaniques qu'il est possible d'obtenir pour quelques exemples de matériaux composites à renfort végétal tissé sollicités dans la direction des fils de chaînes.

Tableau I.2 : Exemple de contrainte à rupture et de module d'Young de matériaux composites à renfort naturel et à matrice thermoplastique et thermodure.

Matrice	Renfort	Taux de fibre (%)	Contrainte à rupture (MPa)	Module d'Young (GPa)	Source
Composites à matrice thermoplastique					
PEBD	Jute	25	18-33	0,37-0,58	[22]
Elium	Lin	37	120	14	[23]
Composites à matrice thermodure					
UP	Lin	29-35	81-89	7,3-8,6	[24]
Epoxy	Chanvre	41	144	15,1	[10]
Epoxy	Lin	30	110	8,0	[25]

I.1.3 La problématique de l'interface

I.1.3.1 Définition de l'interface

Bien que les composites à renfort végétal soient de plus en plus présents dans notre quotidien [26], l'interface reste une des principales problématiques du fait d'un manque de compatibilité entre la fibre végétale et la matrice polymère. L'interface, considérée elle-même comme une phase du composite au même titre que le renfort et la matrice, peut être définie comme étant la frontière entre les fibres et le polymère, possédant ses propres propriétés mécaniques et assurant le maintien des fibres dans la matrice polymère ainsi que le transfert des charges lors d'une sollicitation mécanique [27]. La Figure I.5 présente les différents types de mécanisme d'adhésion fibre/matrice. Il en existe quatre types : l'enchevêtrement moléculaire (Figure I.5a), l'adhésion électrostatique (Figure I.5b), les liaisons chimiques (Figure I.5c) et l'imbrication mécanique (Figure I.5d) [28]. La maîtrise de ces mécanismes d'adhésion se traduit notamment par une bonne imprégnation de la résine dans les fibres et une composition chimique des fibres compatible avec celle de la résine polymère. Dans le cas des composites à renfort végétal, le caractère très hydrophile des fibres pose un problème supplémentaire à leur intégration dans des résines polymères. En effet, en présence d'humidité, la matrice polymère du composite absorbe bien moins d'eau que les fibres végétales, ce qui va entraîner des défauts à l'interface fil/matrice et ainsi dégrader les propriétés mécaniques du composite [29].

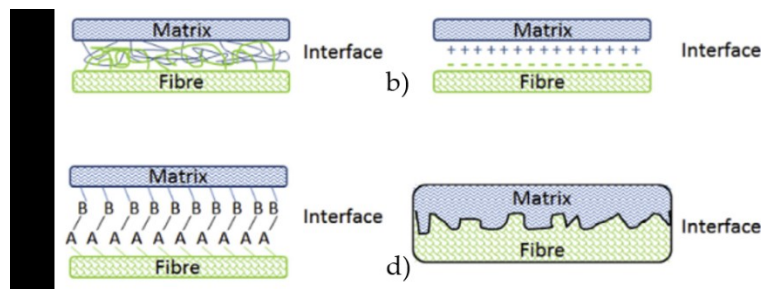


Figure I.5 : Mécanismes d'adhésion à l'interface fibre/matrice : a) enchevêtrement moléculaire, b) adhésion électrostatique, c) liaison chimique et d) imbrication mécanique [28].

I.1.3.2 Caractérisation de l'interface

La qualité d'adhésion à l'interface a donc un impact direct sur les propriétés mécaniques du composite. Ainsi, différents moyens expérimentaux ont été développés afin d'étudier la qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice [30]. L'un des tests développés est le test d'arrachement (*pull-out*). Penn et Bowler [31] l'utilisent dans leurs travaux pour la

première fois au début des années 80. Le principe de ce test consiste à mesurer la force nécessaire pour décoller une fibre immergée dans de la résine polymère. La contrainte maximale de cisaillement à l'interface (*InterFacial Shear Strength* ou IFSS) est alors déduite de cette force et de la surface de contact entre la fibre et la résine. Une variante de ce test, étudiée par Tandon et Pagano [32], consistant à enfoncer la fibre noyée dans la résine polymère s'intitule *push-out*. La force nécessaire pour décoller la fibre de la résine permet d'obtenir la résistance de cisaillement à l'interface. Enfin, l'essai de fragmentation est une méthode initialement développée par Kelly et Tyson [33] en 1965 pour des matériaux composites à renfort de tungstène et de molybdène et à matrice de cuivre. Cette méthode permet la caractérisation de la qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice dans des éprouvettes de type haltère, renforcées par un unique fil central, nommées éprouvettes monofilamentaires. La Figure I.6 présente le principe d'un essai de fragmentation. L'éprouvette monofilamentaire est sollicitée en traction dans la direction du fil central à une vitesse de déformation adaptée au couple fil/matrice.

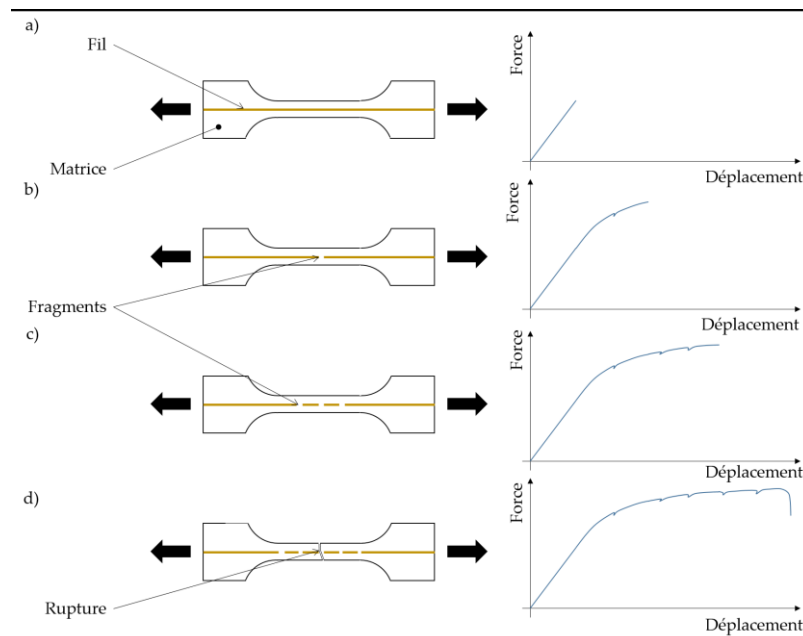


Figure I.6 : Principe de l'essai de fragmentation sur éprouvette monofilamentaire.

Dans un premier temps, le matériau admet un comportement élastique linéaire (Figure I.6a). La Figure I.6b montre l'apparition d'un fragment au milieu de l'éprouvette monofilamentaire, ce qui signifie que la contrainte à rupture du fil est localement atteinte. Cette rupture entraîne un relâchement et une réorganisation des contraintes autour du fil et se traduit sur la courbe force-déplacement par une légère chute de l'effort appliqué, rapidement rattrapée dans la suite de l'essai. Lorsque la contrainte à rupture du fil est à nouveau atteinte, d'autres fragments apparaissent (Figure I.6c) jusqu'à atteindre la saturation en nombre de fragments impliquant ensuite la rupture de l'échantillon (Figure I.6d). La qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice peut ensuite être investiguée par observation *post-mortem*.

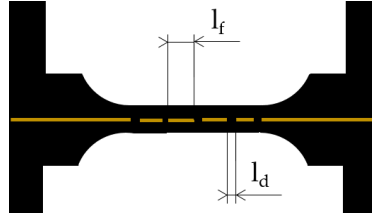


Figure I.7 : Mesures post-mortem des longueurs des fragments (l_f) et des longueurs de décohesion (l_d).

La Figure I.7 montre le principe de dépouillement des essais de fragmentation. Deux mesures sont à réaliser : celle des longueurs des fragments l_f et celle des longueurs de décohesion l_d . Ohsawa et al. [34] proposent d'introduire une longueur dite critique de fragment, notée l_c , définie par l'équation I.1, dépendante des longueurs de fragments mesurées l_f . La résistance de cisaillement à l'interface fil/matrice (*IFSS*) est ensuite définie par l'équation I.2.

$$l_c = 0,75 \times l_f \quad (\text{I.1})$$

$$IFSS = \frac{d \times \sigma_r(l_c)}{2 \times l_c} \quad (\text{I.2})$$

d est le diamètre du fil et $\sigma_r(l_c)$ est la contrainte à rupture d'un fil de longueur l_c . À la suite d'une série d'essais de fragmentation, un certain nombre de longueurs de fragment l_f et donc de longueurs critiques l_c peut être mesuré. Le modèle probabiliste de Weibull [35] peut donc être utilisé, permettant d'obtenir la valeur dominante de longueur critique. L'équation I.3 présente la forme analytique de la distribution de Weibull, notée F :

$$F(x) = 1 - e^{-\left(\frac{x}{\beta_w}\right)^{\alpha_w}} \quad (\text{I.3})$$

où x est la variable étudiée, ici l_c , et α_w et β_w sont respectivement le facteur de forme et le paramètre d'échelle de la distribution de Weibull. La valeur dominante l_c conservée est telle que $F(x) = 0,35$. La valeur l_c admet ainsi une dispersion qui s'étend de la valeur de x pour $F(x) = 0,2$ jusqu'à celle pour $F(x) = 0,5$.

La méthode consiste ensuite à calculer la contrainte à rupture d'un fil de longueur l_c ($\sigma_f(l_c)$) à l'aide d'essais de traction monotone sur un fil seul de longueur l_0 . Pour cela, Zafeiropoulos [36] propose l'extrapolation suivante (équation I.4) :

$$\sigma_f(l_c) = \sigma_f(l_0) \times \left(\frac{l_0}{l_c}\right)^{1/\alpha_w} \quad (\text{I.4})$$

avec $\sigma_f(l_0)$ la contrainte à rupture d'un fil de longueur utile l_0 .

Ainsi, des essais de traction sur des fils seuls associés à des essais de fragmentation sur des éprouvettes monofilamentaires permettent de calculer la contrainte maximale de cisaillement à l'interface (IFSS) d'un couple fil/matrice.

Un autre indicateur de la qualité d'adhésion à l'interface est la longueur de décohésion l_d . En effet, plus cette longueur l_d est courte, moins le fil est libre de se déplacer au sein de la matrice polymère suite à l'apparition d'un fragment et, ainsi, meilleure est l'adhésion à l'interface.

L'interface fil/matrice peut être améliorée par différents traitements, qui peuvent être chimiques ou physiques. Parmi les traitements chimiques issus de la littérature, qui ont pour but de réduire l'hydrophilie des fibres naturelles, on retrouve le traitement par acétylation, par benzylation, alcalin ou encore au peroxyde d'hydrogène [37], [38]. Quant aux traitements physiques, ils ont pour but de modifier la surface des renforts, par augmentation de la rugosité ou par revêtement des fibres par exemple. Un des moyens utilisés est le traitement par plasma, qui peut permettre d'ioniser la surface des fibres [39], [40] ou bien, par la technique de PECVD (*Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition*) qui permet de déposer un film mince de polymère autour des renforts [41]. Dans le cadre de ce travail de thèse, le choix a été fait de conserver les tissus dans leur état naturel, sans y appliquer de traitement.

1.1.3.3 Caractérisation fine de l'interface fil/matrice

1.1.3.3.1 Mesure des champs de déformation

Les indicateurs précédemment définis (IFSS et longueurs de décohésion l_d) permettent uniquement de classer différents couples fil/matrice entre eux. Il paraît important également de caractériser plus finement l'interface fil/matrice afin de mieux comprendre les mécanismes mis en jeu. En particulier, il serait intéressant de pouvoir quantifier la répartition des déformations autour du fil au sein de l'éprouvette monofilamentaire. Pour ce faire, la technique sans contact de mesure des déformations par corrélation d'images numériques a été retenue. Elle peut être utilisée en deux dimensions - corrélation d'images numériques classique (DIC) - ou en trois dimensions - corrélation d'images numériques volumiques (DVC). Plusieurs études ont eu pour but de déterminer les champs de déformation dans les trois directions de l'espace dans des matériaux de différentes natures. En 2004, Verhulp *et al.* [42] associent pour la première fois la microtomographie et la DVC pour mesurer les déformations au sein d'un os trabéculaire (ou spongieux). La microstructure de l'os a été utilisée comme mouchetis volumique. De la même façon, Hussein *et al.* [43] et Palanca *et al.* [44] ont analysé les déformations et le comportement mécanique d'os vertébraux. Les matériaux géologiques sont également constitués d'un mouchetis volumique naturel. Adam *et al.* [45] ont étudié un mélange de quartz sous forme de sable et de billes de céramique en combinant la corrélation d'images numériques 3D à des acquisitions d'images microtomographiques. En ce qui concerne les polymères renforcés par des fibres, Ovalle *et al.* [46] ont utilisé la technique DVC

pour déterminer les liens entre l'orientation des fibres et le taux de porosité au sein d'un composite à fibres courtes de verre. Mehdikhani *et al.* ont analysé des images acquises par synchrotron pour étudier l'orientation des fibres dans un composite verre/époxy par corrélation d'images numériques standard [47] et la propagation des endommagements dans un composite carbone/époxy par corrélation d'images numériques 3D [48]. Le mouchetis utilisé dans ces deux études est la section des fibres, ce qui rend impossible l'obtention de l'ensemble des champs de déformation 3D. Holmes *et al.* [49] ont également combiné la microtomographie avec la corrélation d'images numériques en trois dimensions pour mesurer les champs de déformation et analyser l'endommagement dans des composites à renfort de verre. Ils ont aussi utilisé la section transverse des fibres comme mouchetis, ce qui rend l'obtention d'une mesure des champs de déformation dans toutes les directions de l'espace impossible et ce qui limite la résolution spatiale des mesures. L'ajout de particules au sein de la matrice polymère est une solution donnant accès à l'ensemble des champs de déformation. Timpano et Melenka [50] ont réalisé une étude paramétrique sur la taille des particules du mouchetis et étudié son effet sur les calculs de corrélation d'images numériques 3D dans un échantillon d'époxy pure chargée de poudre de cuivre. Ils ont testé plusieurs diamètres de particules (de 10 à 200 μm) et ont montré que, pour une résolution cible de 10,5 $\mu\text{m}/\text{voxel}$, les particules d'un diamètre de 25 μm offraient la plus grande précision. Enfin, Schöberl *et al.* [51] ont ajouté des particules de titanate de baryum dans la matrice polymère d'un composite stratifié carbone/époxy. Les particules forment ainsi un mouchetis en trois dimensions. Des acquisitions d'images par synchrotron ont permis de réaliser des calculs de corrélation d'images numériques 3D avec des fenêtres d'étude cubiques de 0,390 mm de côté.

1.1.3.3.2 Analyse des endommagements

La caractérisation des endommagements interfaciaux est également une étape cruciale. La microscopie électronique à balayage permet d'observer à fort grossissement les décohésions fil/matrice mais seulement après rupture de l'échantillon [38]. La microscopie optique nécessite quant à elle de découper l'échantillon suivant plusieurs sections [52]. Finalement, la microtomographie peut permettre d'observer les endommagements interfaciaux sans détruire l'échantillon, à condition d'avoir une résolution suffisante. Dans une étude précédente au laboratoire, Barbière [13] a notamment travaillé sur des composites tissés à renfort de chanvre soumis à une sollicitation mécanique en traction à chargements répétés progressifs. Un essai a été réalisé au sein du microtomographe sur des composites d'orientation de renfort à $\pm 45^\circ$ et a permis, pour différents niveaux de contrainte et déformation, de mesurer un taux d'endommagement. La Figure I.8 montre les acquisitions d'images microtomographiques réalisées pour cinq niveaux de charge lors de cet essai mécanique *in-situ* et les taux d'endommagement associés.

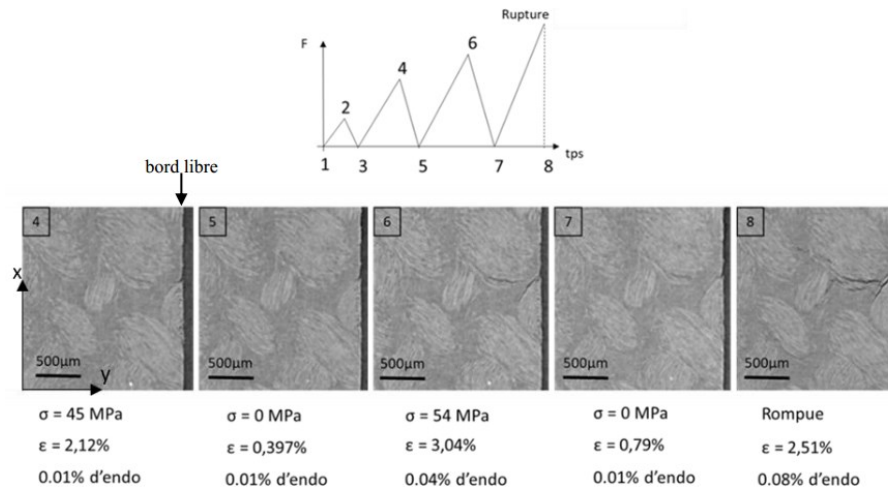


Figure I.8 : Évolution de l'endommagement lors d'un essai de traction à chargements répétés progressifs dans un microtomographe sur une éprouvette chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ [13].

I.2 Vieillissement hydrique

Lorsque les composites à renfort végétal ont pour but d'être utilisés dans le cadre d'applications donnant lieu à des variations de température et d'humidité, l'interface est d'autant plus sollicitée. Pour des applications extérieures comme dans le cas des pièces de carrosseries automobiles ou ferroviaires, des pales d'éoliennes ou des cadres de vélo, ces matériaux font face à des variations d'humidité et de température.

I.2.1 Phénomènes de diffusion

I.2.1.1 Diffusion au sein des matériaux composites

Chaque matériau composite, à renfort synthétique ou naturel, admet un comportement à l'absorption qui dépend de plusieurs facteurs : la résine polymère, la nature et la quantité des renforts, le taux d'humidité ou l'immersion dans l'eau, la température ambiante ou celle de l'eau, etc. Dans le cadre d'un suivi gravimétrique, la variation relative de masse d'un échantillon, notée M_t , s'exprime selon l'équation I.5 tel que :

$$M_t = \frac{m_t - m_0}{m_0} \quad (I.5)$$

avec m_t la masse de l'échantillon à l'instant t et m_0 la masse de référence *i.e.* la masse de ce même échantillon à l'instant $t = 0$, avant le vieillissement hydrique.

Plusieurs lois de diffusion peuvent décrire le comportement à l'absorption des matériaux composites. La loi la plus utilisée est la loi de Fick, en hypothèse unidirectionnelle. Le point de départ de cette loi de Fick est une équation de diffusion à une dimension (équation I.6) où le coefficient de diffusion D est une constante, quelle que soit la teneur en espèce diffusée au sein du matériau à l'instant t [53], c est la concentration de l'espèce diffusée et x la direction de diffusion. L'intégration de cette équation I.6 permet d'exprimer le problème de diffusion 1D par l'équation I.7 :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \times \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (\text{I.6})$$

$$\frac{M_t}{M_\infty} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left(\frac{-D \times (2n+1)^2 \times \pi^2 \times t}{e^2}\right) \quad (\text{I.7})$$

avec M_∞ la prise de masse relative à saturation et e l'épaisseur de l'échantillon.

Cette expression se simplifie par deux équations. Une équation qui correspond aux premiers instants de l'absorption (équation I.8), aux temps dits « courts », tels que $M_t/M_\infty < 0,6$, et une équation correspondant à la seconde partie de l'absorption (équation I.9), aux temps dits « longs », tels que $M_t/M_\infty > 0,6$. Ainsi, le coefficient de diffusion de Fick suit l'équation I.10, qui est fonction de la pente k de la partie linéaire de la courbe $M_t-\sqrt{t}$.

$$\frac{M_t}{M_\infty} = \frac{4}{e} \times \sqrt{\frac{D \times t}{\pi}} \quad (\text{I.8})$$

$$\frac{M_t}{M_\infty} = 1 - \exp\left(-7,3 \times \left(\frac{D \times t}{e^2}\right)^{3/4}\right) \quad (\text{I.9})$$

$$D = \pi \times \left(\frac{e \times k}{4 \times M_\infty}\right)^2 \quad (\text{I.10})$$

La pertinence d'une approximation du comportement à l'absorption des matériaux composites à renfort naturel par cette loi de Fick a été démontrée dans un certain nombre d'études [54]–[58]. Shahzad [54] démontre par exemple la pertinence d'approximer la prise en eau d'une résine polyester renforcée par des fibres courtes de chanvre immergée dans de l'eau à température ambiante par une loi de Fick unidirectionnelle (Figure I.9). Le taux massique de fibre était de l'ordre de 56%.

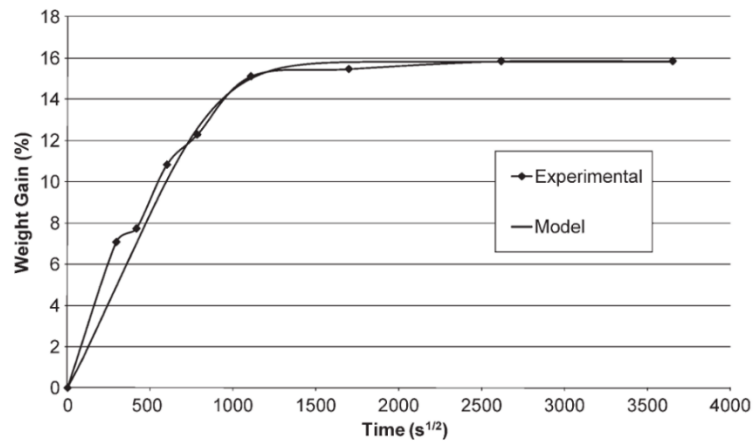


Figure I.9 : Évolution de la prise en eau et loi de Fick d'un composite à fibres courtes chanvre/polyester dans de l'eau à température ambiante [54].

Scida *et al.* [55] ont aussi étudié le comportement à l'absorption de composites unidirectionnels lin/époxy sous 90% d'humidité relative (HR) en considérant deux températures différentes (20°C et 40°C). Les composites fabriqués à partir de tissus pré-impregnés admettaient un taux volumique de fibres de 44%. Leur comportement à l'absorption suit également une loi de Fick unidirectionnelle. La Figure I.10a montre les évolutions d'absorption en eau de ces composites soumis aux deux couples humidité relative/température. Enfin, Dayo *et al.* [58] ont testé différents couples HR/température sur des composites à fibres courtes de chanvre. Ils ont observé une cinétique d'absorption et une prise en eau maximale qui augmentent avec la température et l'humidité relative (Figure I.10b), tout en conservant un comportement du type fickien.

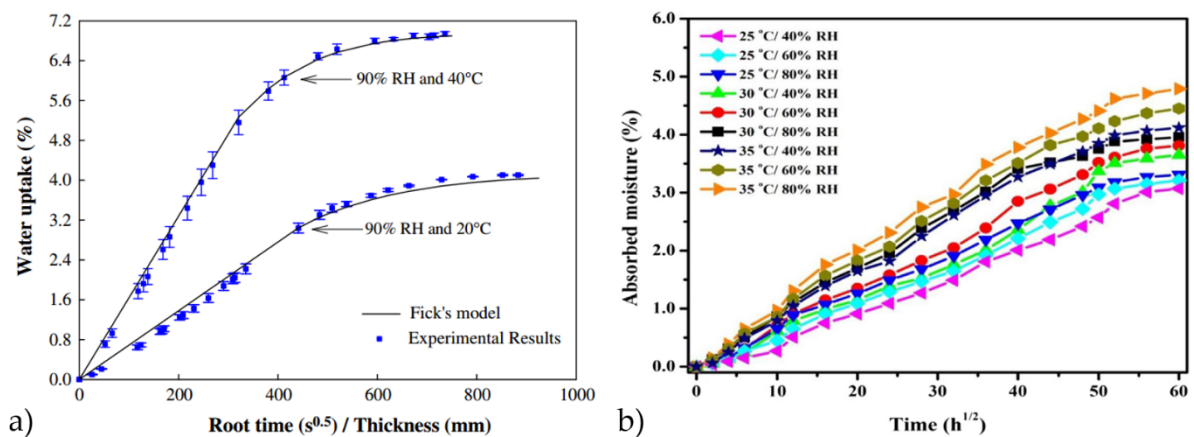


Figure I.10 : Courbes d'absorption en eau de composites a) UD chanvre/polyester [55] et b) à fibres courtes de chanvre/polybenzoxazine pour différents couples température/humidité relative [58].

I.2.1.2 Conséquences de l'absorption d'eau

L'absorption en eau des matériaux composites peut avoir des effets physico-chimiques sur la matrice et le renfort. En effet, l'absorption en eau va impliquer un gonflement des matériaux composites dépendant de l'absorption en eau de la matrice et du renfort. Lorsque le matériau composite est immergé dans l'eau, les couches externes de celui-ci vont être les premières à atteindre la saturation en eau. Pendant cette phase, où l'ensemble du matériau admet des taux d'absorption différents, des contraintes internes parfois intenses se produisent comme l'ont montré Yagoubi *et al.* [59] et Pitarresi *et al.* [60] pour des résines époxydes. Ces contraintes internes au sein de la matrice peuvent donc dégrader l'interface fil/matrice dans des composites, quelle que soit la nature du renfort.

Dans le cas de composites à renfort végétal, le contraste entre l'hydrophilie des fibres qui est très importante et celle de la matrice, qui est faible, provoque des défauts à l'interface fil/matrice [61], [62]. La Figure I.11 montre le scénario du développement des décohésions fil/matrice pour une immersion dans l'eau suivi d'un séchage d'un composite à renfort végétal. L'eau s'infiltré d'abord dans la fibre qui atteint rapidement sa saturation. Le gonflement de la fibre, confinée dans la matrice, crée des microfissurations de la matrice polymère. L'eau diffuse ensuite dans la matrice polymère en dissolvant une partie des constituants de la fibre (éléments solubles dans l'eau). Enfin, lorsque l'eau est évacuée, elle laisse place à un vide entre la fibre et la matrice. L'absorption en eau a donc un double effet : la dégradation des fibres par dissolution de certains éléments dans l'eau et la création de décohésions à l'interface fil/matrice.

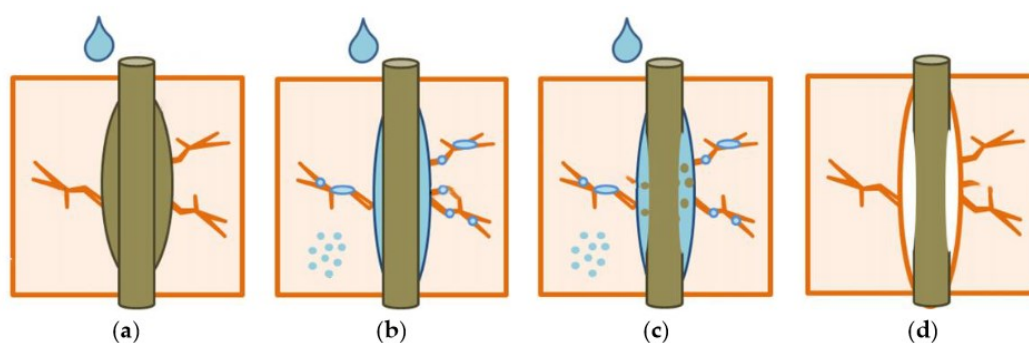


Figure I.11 : Dégradation à l'interface fil/matrice : a) développement de fissures matricielles, b) diffusion de l'eau dans la matrice, c) éléments solubles de la fibre dissous, d) décohésion fil/matrice après séchage [61].

Perrier *et al.* [63] ont démontré par des observations au microscope optique l'évolution des décohésions fil/matrice dans des éprouvettes monofilamentaires chanvre/Greenpoxy et chanvre/époxy lors de leur séchage, après 70 jours dans de l'eau à température ambiante. Ils observent une croissance du développement des décollements à l'interface fil/matrice qui se stabilise après environ 80 jours de séchage. La Figure I.12 montre les micrographies d'une

section d'une éprouvette monofilamentaire chanvre/Greenpoxy avant et après 70 jours dans l'eau puis pour différentes durées de séchage.

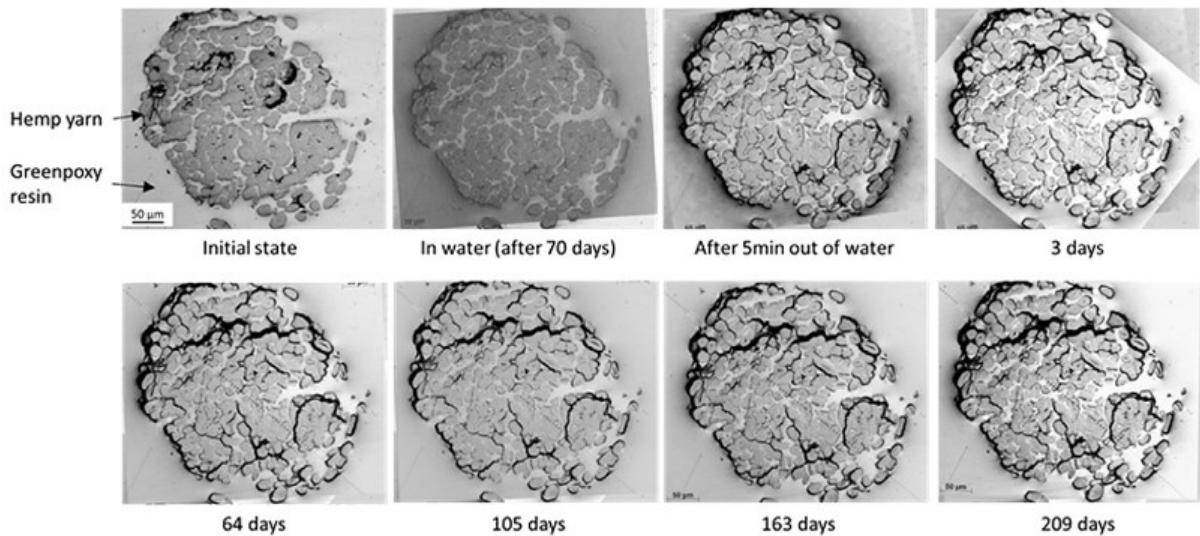


Figure I.12 : Évolution des décohésions fil/matrice lors du séchage suite à une immersion dans l'eau pendant 70 jours d'un composite monofilamentaire chanvre/Greenpoxy [63].

Un autre effet de l'absorption en eau sur les résines polymères est leur plastification. Ce phénomène agit sur les liaisons secondaires de la structure moléculaire du polymère en les brisant, facilitant ainsi la pénétration de l'eau dans le polymère [64]. Les polyamides et les polyépoxydes sont généralement les plus affectés par la plastification, du fait de leur hydrophilie plus prononcée. La Figure I.13 montre les effets de la plastification sur la courbe contrainte-déformation de deux polymères : un polyamide 6-6 sec (I), à 50% d'humidité (II) et saturé en eau (III) en Figure I.13a et une résine époxy séchée (*Unaged*) et saturée en eau (*Aged*) en Figure I.13b. La plastification a un impact direct sur les propriétés mécaniques des polymères : abaissement de la rigidité, chute de la limite d'élasticité et augmentation de la déformation à rupture. A noter que la plastification est un phénomène réversible, résorbé lorsque le polymère retrouve un état sec.

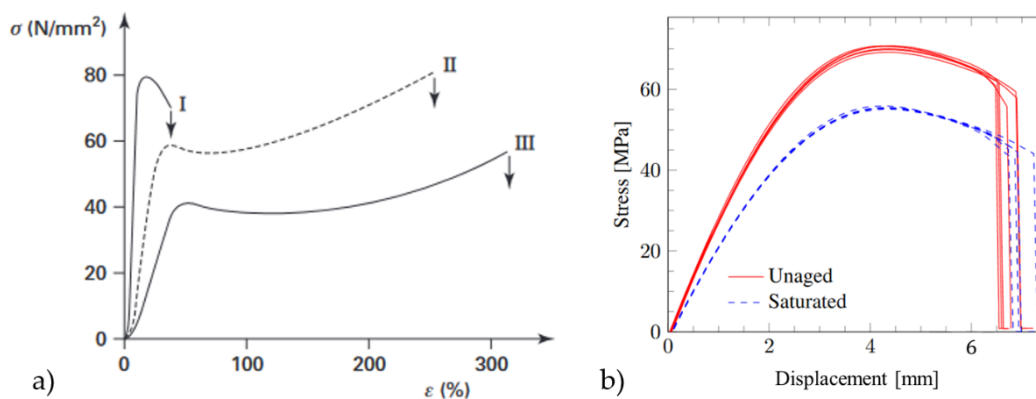


Figure I.13 : Courbes de traction a) d'un polyamide 6-6 sec (I), à 50% d'humidité (II) et saturé en eau (III) [64] et b) d'une résine époxy séchée et saturée en eau [65].

Enfin, une réaction chimique d'hydrolyse peut se produire lors d'une immersion de longue durée dans de l'eau. La réaction d'hydrolyse, irréversible, est provoquée par la présence de molécules H₂O qui entraîne une coupure du squelette macromoléculaire du polymère [64]. Cela provoque un abaissement des propriétés mécaniques des polymères. Cette réaction, comme toute réaction chimique, est accélérée lorsque la température d'immersion augmente.

I.2.2 Influence sur le comportement mécanique et les mécanismes d'endommagement

Le taux d'absorption en eau ainsi que les conditions de vieillissement (taux d'humidité et température) ont une influence sur les propriétés mécaniques résiduelles des matériaux composites. Pour caractériser les conséquences de la diffusion de l'eau sur les propriétés mécaniques des matériaux composites, différents types d'essai mécanique peuvent être réalisés : traction monotone, traction en charges/décharges répétées progressives, flexion, fatigue, etc. Un certain nombre d'études [29], [55], [58], [62], [66]–[70] ont traité de l'évolution des propriétés mécaniques de matériaux composites suite à des vieillissements hydriques plus ou moins sévères.

Des travaux se sont récemment focalisés sur l'évolution des propriétés en flexion de composites époxy à renfort de verre soumis à des immersions en eau de mer à différentes températures [71]. Ils ont notamment montré que, suite à une immersion dans de l'eau pendant 10 mois, ces composites admettaient une perte en résistance à la flexion de 32% dans une eau de mer à température ambiante et de 48% dans une eau de mer portée à 55°C. Des observations des échantillons vieillis avant essai mécanique ont été réalisées par microscope électronique à balayage pour différentes matrices polymères (Figure I.14). Elles ont montré une dégradation notable de l'interface fil/matrice pour les échantillons ayant subi 10 mois d'immersion dans l'eau à 35°C.

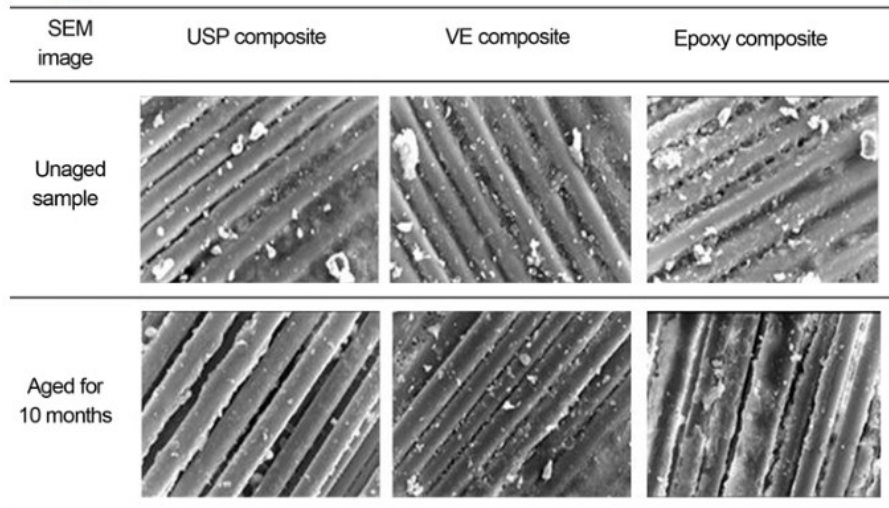


Figure I.14 : Observations par microscope électronique à balayage de composites à renfort de verre non vieillis et immergés dans de l'eau de mer pendant 10 mois [71].

Malloum *et al.* [72] ont étudié le comportement en traction de matériaux composites à renfort de lin et à matrice bio-époxy. Deux orientations de renfort ont été étudiées : $\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$. Les matériaux composites ont été immergés dans de l'eau à température ambiante pendant 1 à 30 jours. Quelle que soit l'orientation des renforts, la sollicitation en traction des composites a permis de révéler une dégradation des propriétés mécaniques. La Figure I.15 montre les courbes contrainte-déformation en fonction du nombre de jours d'immersion et de la teneur en eau des composites pour les orientations $0^\circ/90^\circ$ (Figure I.15a) et $\pm 45^\circ$ (Figure I.15b).

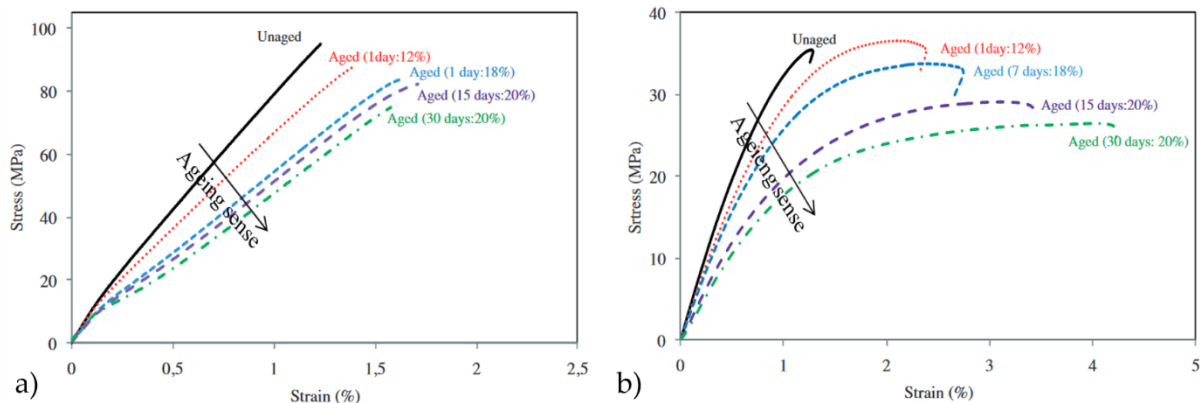


Figure I.15 : Courbes contrainte-déformation de bio-composites à renfort de lin d'orientation a) $0^\circ/90^\circ$ et b) $\pm 45^\circ$ avant et après immersion dans de l'eau à température ambiante [72].

Après un jour d'immersion, ils observent une perte de rigidité de l'ordre de 13% et 21% pour les composites dont les renforts sont orientés à, respectivement, $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$. Ces pertes en rigidité atteignent rapidement un plateau lorsque le temps d'immersion augmente pour se situer autour de 25% et 30% respectivement pour les composites $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$. De la même

manière, la contrainte à rupture diminue rapidement dès les premiers instants de vieillissement pour atteindre après 30 jours d'immersion dans l'eau une perte de 14% pour les composites $0^\circ/90^\circ$ et de 27% pour ceux dont l'orientation des renforts est à $\pm 45^\circ$. Enfin, le vieillissement dans l'eau, qui a un effet plastifiant sur la matrice, se traduit par une forte augmentation de la déformation maximale. En effet, celle-ci passe de 1% pour les matériaux non vieillis à 1,75% pour les composites à renfort de lin orienté à $0^\circ/90^\circ$ et à 4,2% pour ceux orientés à $\pm 45^\circ$. Au-delà de l'effet plastifiant de l'eau sur les résines polymères, la diminution des propriétés mécaniques (module d'Young et contrainte à rupture) est causée par une dégradation des propriétés à l'interface fil/matrice ainsi qu'à une dégradation des fibres de lin.

Maslinda *et al.* [73] ont quant à eux étudié le comportement à l'absorption en eau et les effets sur les mécanismes d'endommagement de composites hybrides. Les renforts utilisés sont des tissus composés de fils de natures différentes (kénaf + jute et kénaf + chanvre). Les observations par microscopie électronique à balayage des faciès de rupture après traction des échantillons secs (Figure I.16a) et humides (Figure I.16b) ont montré des dégradations à l'interface fil/matrice plus prononcées lorsque le composite est sollicité après vieillissement hydrique. Un plus grand nombre d'arrachements de fibres unitaires (*pull out*) ont été également observés après vieillissement hydrique.



Figure I.16 : Observations de faciès de rupture par microscopie électronique à balayage de composites tissés à renfort végétal a) avant immersion, b) après immersion dans l'eau [73].

Chilali *et al.* [68] ont étudié l'influence de la saturation en eau sur le comportement mécanique de composites à renfort de lin et à matrice thermodure (époxyde) et thermoplastique (Elium 150). Deux types de sollicitations mécaniques ont été effectués : traction monotone et traction en charges/décharges répétées progressives. L'ensemble des essais mécaniques a été instrumenté par un système d'acquisition par émission acoustique afin de suivre l'évolution de l'endommagement en cours de sollicitation mécanique. Le vieillissement hydrique consistait à immerger les composites dans de l'eau à température ambiante jusqu'à atteindre la saturation en eau. Un suivi gravimétrique a été réalisé sur les deux types d'échantillons et a

montré un comportement à l'absorption de type fickien. Les essais de traction monotone ont été effectués après 2, 7, 15 et 30 jours d'immersion correspondant à des taux d'absorption en eau variables, allant de 55% à 100% de la saturation. La Figure I.17 montre l'évolution du module d'Young (Figure I.17a) et de la contrainte à rupture (Figure I.17b) des matériaux de l'étude en fonction du nombre de jours d'immersion dans l'eau à température ambiante. Dès deux jours d'immersion, correspondant à un taux d'absorption en eau de 55%, la rigidité des composites étudiés est quasiment divisée par deux et une perte de contrainte à rupture de 36% est observée. Un plateau est rapidement atteint pour ces deux propriétés mécaniques. Concernant la déformation à rupture, la plastification des résines et la dégradation des fibres entraînent un allongement à rupture deux fois plus important pour les composites lin/époxy et multiplié par 1,4 pour les composites lin/Elium.

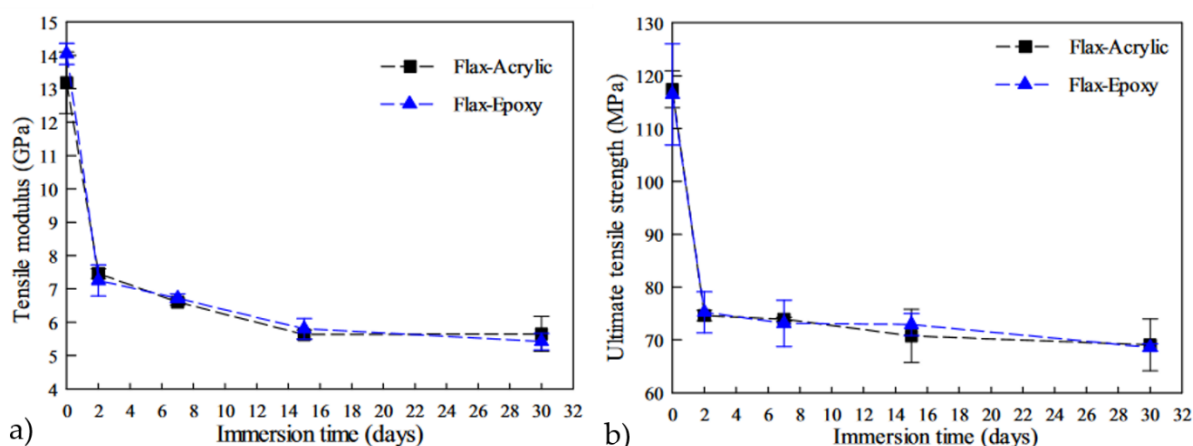


Figure I.17 : a) Module d'Young et b) contrainte à rupture de composites à renfort de lin et à matrice époxyde (triangle bleu) et Elium (carré noir) en fonction du nombre de jours d'immersion dans l'eau [68].

Des essais en charges/décharges répétées progressives ont également été réalisés. La Figure I.18 montre les courbes contrainte-déformation des deux matériaux de l'étude avant immersion et après 30 jours d'immersion (saturation) en eau. Une première observation à noter est que les essais de traction monotone et ceux en charges/décharges répétées progressives permettent de décrire de la même manière le comportement mécanique des matériaux. On constate que le vieillissement hydrique jusqu'à saturation en eau induit une forte perte des propriétés mécaniques.

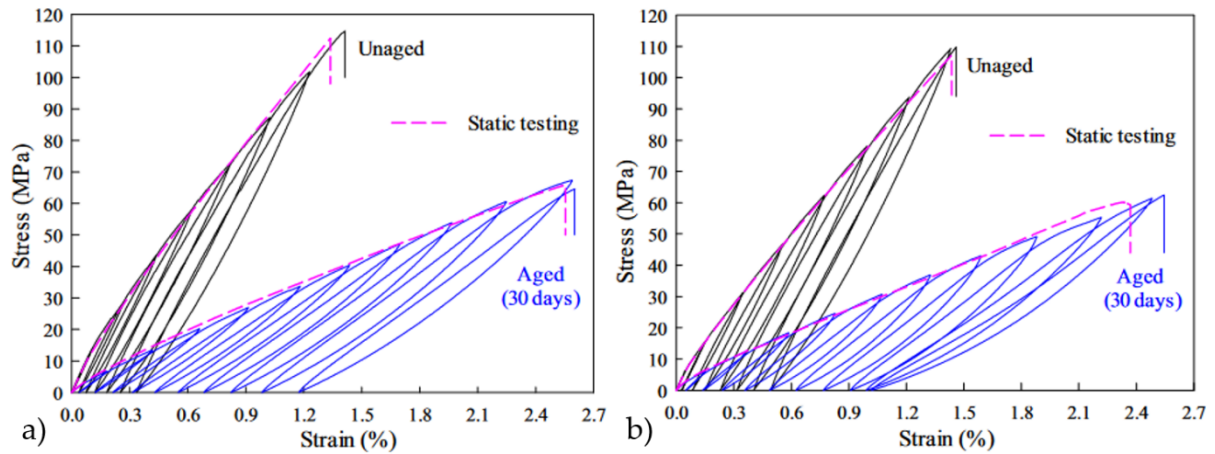


Figure I.18 : Courbes contrainte-déformation issues d'essais de traction monotone et en charges/décharges répétées progressives pour des composites a) lin/époxy et b) lin/Elium avant vieillissement hydrique (Unaged) et après saturation en eau (Aged), sollicités dans la direction des fibres [68].

Les essais en charges/décharges répétées progressives permettent d'étudier l'évolution du module élastique en fonction de l'avancée de l'essai. Dans l'étude de Chilali, un facteur l_s , qui indique la perte de module, est introduit et est défini par l'équation I.11. Ce facteur s'inspire des travaux de Lemaitre [74] sur la définition de l'endommagement mécanique à l'échelle macroscopique. Ici, le module E_i est mesuré à la remontée en charge de chaque boucle i de l'essai mécanique et E_0 est le module d'Young initial.

$$l_s = \frac{E_i}{E_0} \quad (\text{I.11})$$

Le suivi du module montre, quel que soit l'état de vieillissement des composites, une forte décroissance en rigidité dans une première phase de l'essai mécanique (jusqu'à 50% de la contrainte maximale) suivi par une diminution moins marquée du module en fin d'essai. Les pertes en rigidité en fin d'essai atteignent, respectivement, -20% et -13% pour les composites lin/époxy et lin/Elium avant vieillissement hydrique. Après vieillissement hydrique, les pertes en rigidité sont plus importantes : -26% et -19% pour les composites lin/époxy et lin/Elium. Ces différences sont étudiées avec l'appui du suivi des endommagements par acquisition des émissions acoustiques en cours d'essais. Généralement, trois classes d'endommagement caractéristiques sont extraites des données d'émission acoustique : la fissuration matricielle, les décohésions fil/matrice et les ruptures de fibres [75], [76]. Dans les travaux de Chilali, le type d'endommagement prépondérant en termes de nombre d'occurrences est la dégradation de l'interface fil/matrice (*Class 1* dans la Figure I.19). Cette dégradation de l'interface est plus marquée et plus précoce lorsque les composites à renfort de lin sont exposés à un vieillissement hydrique jusqu'à saturation en eau (Figure I.19b) par rapport à ceux non vieillis (Figure I.19a).

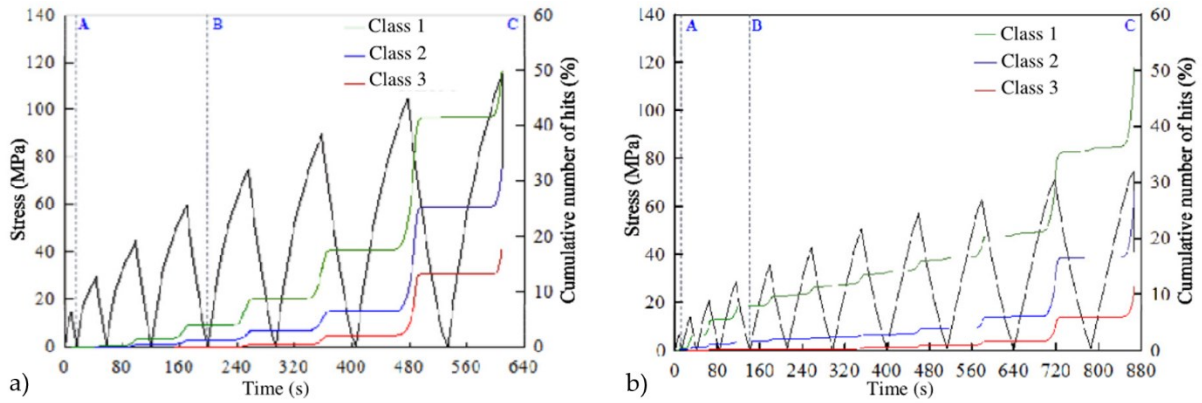


Figure I.19 : Contrainte et nombre cumulé d'évènements acoustiques en fonction du temps pour des composites lin/époxy a) stockés à l'ambiante et b) après saturation en eau [68].

Enfin, Perrier *et al.* [29] ont réalisé un essai de traction à chargements répétés progressifs interrompu d'acquisitions d'images microtomographiques. Cela a permis, pour différents niveaux de charge, de visualiser et de quantifier les endommagements apparaissant en cours d'essai mécanique (Figure I.20). Cet essai a été réalisé pour une éprouvette de chanvre/Epilam $\pm 45^\circ$ stockée à l'ambiante (Figure I.20a) et pour une même éprouvette saturée en eau (Figure I.20b). Ainsi, au moment de la rupture (100% of σ_u), un taux d'endommagement 20 fois plus élevé a été mesuré pour l'éprouvette saturée en eau. Ce résultat s'explique par le plus fort développement d'endommagements situés à l'interface/fil matrice, comme c'est le cas dans l'étude de Chilali [68] pour des composites lin/époxy saturés en eau (Figure I.19b).

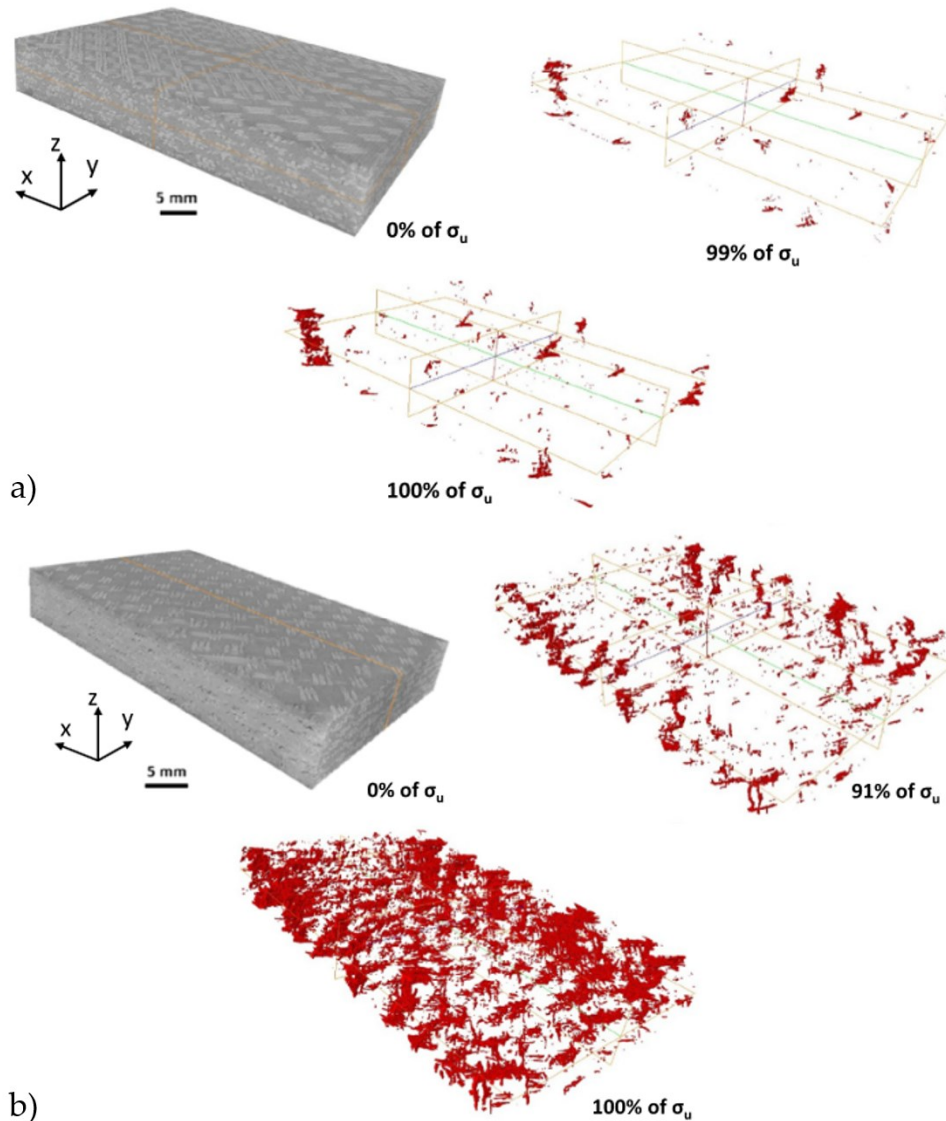


Figure I.20 : Reconstruction 3D d'images microtomographiques d'éprouvettes chanvre/Epilam durant un essai de traction à chargements répétés progressifs pour a) un stockage ambiant et b) un état saturé en eau (d'après [29]).

I.3 Fatigue hydrique

Les conditions météorologiques entraînent des variations d'humidité et de température quotidiennement. La Figure I.21 montre les variations d'humidité relevées par Météo-France durant l'année 2021 pour trois villes françaises aux climats différents [77]. Le climat de la ville de Cayenne est fortement humide tout au long de l'année, mais des variations quotidiennes de faibles amplitudes sont tout de même observées. Dans le cas de Poitiers ou de Belle-Île-en-mer, le taux d'humidité relative avoisine les 100% en hiver pour diminuer fortement au printemps et en été et atteindre entre 40% et 60% d'humidité relative. Dans ces

deux villes métropolitaines, les variations entre le jour et la nuit sont plus importantes qu'à Cayenne, qui reste globalement très humide. En revanche, l'humidité relative peut passer de 40% à 100% en moins de 24 heures en métropole, lors des orages d'été, par exemple. Ces variations d'humidité relative entraînent une absorption et une désorption périodiques significatives des renforts végétaux dans les matériaux composites. À ces variations d'humidité, s'ajoutent les variations de température, non représentées ici, qui ont une influence non négligeable sur les cinétiques d'absorption ainsi que sur les propriétés mécaniques qui en résultent.

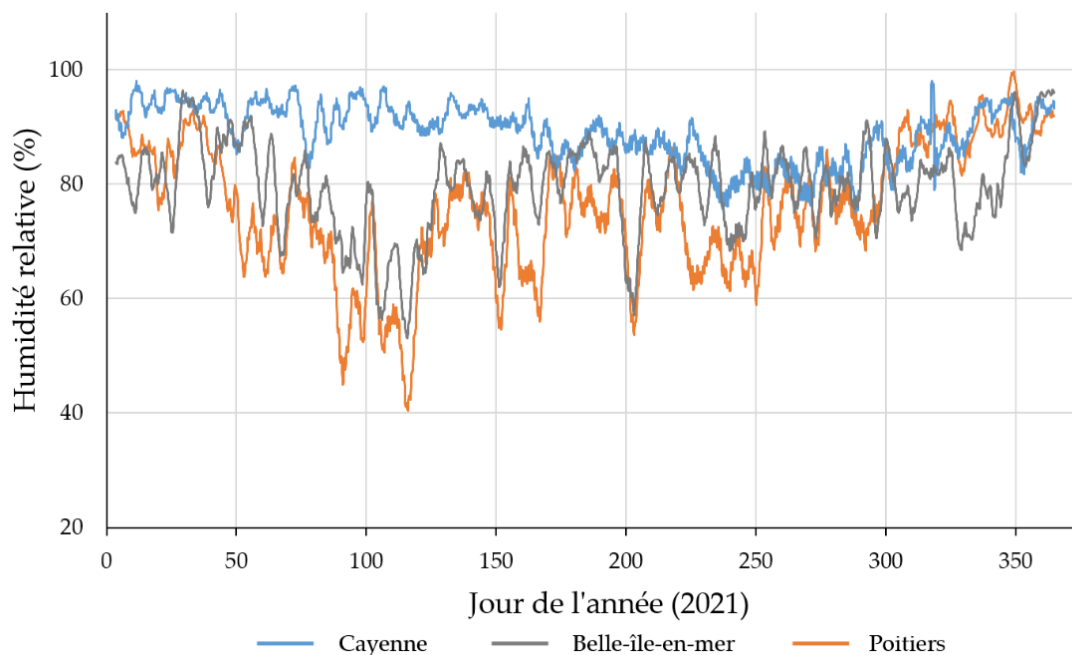


Figure I.21 : Variations d'humidité relative relevée par Météo-France sur l'année 2021 pour les stations météo de Cayenne, Belle-île-en-mer et Poitiers [77].

Afin de s'approcher au mieux des conditions de service d'une pièce en matériau composite, il est donc nécessaire de procéder à du vieillissement hydrique cyclique. Cette approche permet de simuler les conditions météorologiques variables décrites en Figure I.21. La fatigue hydrique est définie par une phase d'absorption d'eau suivie d'une phase de séchage. Les paramètres des cycles de fatigue hydrique à fixer sont :

- le type de conditionnement hydrique : immersion dans l'eau ou maintien dans un milieu contrôlé en humidité relative,
- la température de conditionnement hydrique T_{imm} ,
- la durée de la phase d'absorption du matériau t_{imm} ,
- le type de séchage,

- la température de séchage $T_{séch}$,
- la durée de séchage $t_{séch}$,
- le nombre de cycles de fatigue hydrique appliqués N .

Les paramètres de fatigue hydrique recensés dans la littérature sont réunis dans le Tableau I.3. Peu d'études traitent de ce type de vieillissement sur les matériaux composites. Plusieurs approches sont adoptées. Celle de Newman [78], par exemple, traite exclusivement du comportement à l'absorption en eau de composites lin/époxy soumis à des cycles de fatigue hydrique. D'autres études étudient à la fois le comportement à l'absorption durant la fatigue hydrique et les conséquences sur les propriétés mécaniques.

Tableau I.3 : Bilan des études sur la fatigue hydrique de composites à renfort végétal et paramètres des cycles de fatigue hydrique associés.

	Gassan [79]	Kim [80]	Newman [78]	Freund [81]	Mak [82]	Sodoke [83]	Cadu [84]
Renfort	Jute	Sisal	Lin	Lin Verre	Lin Verre	Lin	Lin
Matrice	Époxy	Époxy Vinylester	Époxy	Elium	Époxy Bioépoxy	Époxy	Époxy
Conditionnement hydrique	Eau	Eau	Eau	80% RH	Eau	Eau	90% RH
T_{imm} (°C)	23	23	20	80	23	21	55
t_{imm}	-	9 jours	11 jours	Variable	23 jours	Saturation	3,5 jours
Séchage	-	Étuve	-	10% RH	Étuve	Étuve	40% RH
$T_{séch}$ (°C)	-	50	60	80	60	60	55
$t_{séch}$	-	1 jour	3 jours	Variable	5 jours	2 jours	3,5 jours
N	5	5	12	5	12	7	52

L'étude de Newman [78] porte sur le vieillissement de matériaux composites à renfort tissé de lin par fatigue hydrique. Dans cette étude, la matrice est une résine époxy. Le protocole de fatigue hydrique, décrit dans le Tableau I.3, consiste à immerger les composites dans de l'eau à température ambiante puis à les sécher en étuve à 60°C. Douze cycles de fatigue hydrique ont été effectués. Des mesures dimensionnelles des échantillons sont réalisées tout au long du vieillissement. Une augmentation significative de l'épaisseur est observée. La diffusion de l'eau dans les composites lin/époxy suit une loi de Fick. Le coefficient de diffusion de Fick croît avec le nombre de cycles de fatigue hydrique. À partir des mesures géométriques des échantillons, Newman en déduit que le taux de porosité au sein des composites lin/époxy croît aussi avec le nombre de cycles de fatigue hydrique. Comme le montre la Figure I.22,

l'augmentation du coefficient de diffusion est directement liée à l'augmentation du taux de porosité au sein des composites lin/époxy.

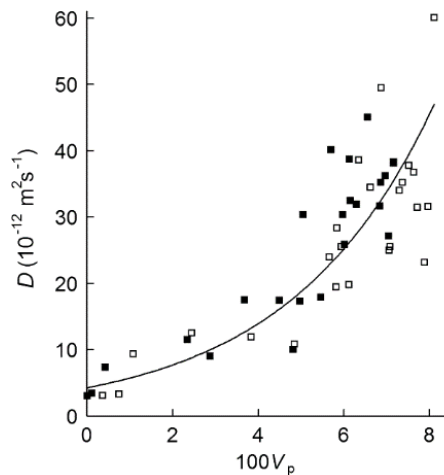


Figure I.22 : Coefficient de diffusion de Fick en fonction du taux de porosité (V_p) après différents nombres de cycles de fatigue hydrique dans des composites lin/époxy [78].

En 1999, Gassan et Bledzki [79] sollicitent mécaniquement des composites tissés à matrice époxy et à renfort de jute (taux volumique de fibres de 40%) ayant subi une succession de cycles de fatigue hydrique. Dans leur étude, des cycles de fatigue hydrique variables consistant en une série d'immersions dans de l'eau à température ambiante suivi de séchages sous vide sont réalisés. Les durées et les températures de fatigue hydrique ne sont pas clairement explicitées. Les conséquences de ces cycles de fatigue hydrique sur les propriétés mécaniques en traction sont étudiées. La Figure I.23 montre les pertes en résistance à la traction et en module d'Young en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique, jusqu'à cinq cycles. L'objectif de leur étude consistait aussi à étudier l'effet d'un traitement au silane des tissus de jute sur l'évolution des performances des composites. Quel que soit l'état du tissu (traité ou non), la résistance à la traction des composites jute/époxy atteint 84% de la valeur initiale (celle avant fatigue hydrique) après 5 cycles (Figure I.23a). En revanche, le traitement au silane a visiblement un effet sur la perte en module d'Young, qui passe, après cinq cycles de fatigue hydrique, à 80% de la valeur avant vieillissement pour les tissus non traités contre 88% de la valeur initiale pour les tissus traités (Figure I.23b).

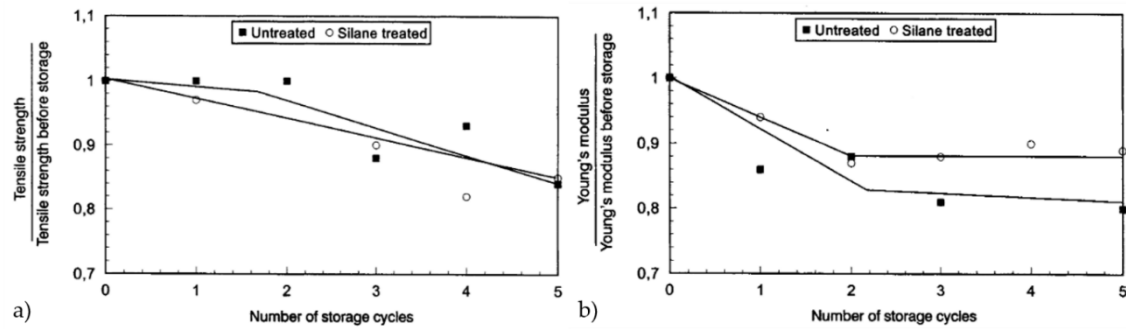


Figure I.23 : Résistance à la traction (a) et module d'Young (b) normalisés des composites tissés jute/époxy en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique [79].

En 2006, Kim et Seo [80] étudient l'effet de la fatigue hydrique sur des résines thermodures (époxy et vinylester) renforcées par des tissus en fibres de sisal. Ils réalisent une étude préliminaire leur permettant de caractériser le comportement à l'absorption des composites de l'étude afin d'optimiser les durées et les températures des phases d'immersion et de séchage. Jusqu'à 5 cycles de fatigue hydrique ont été réalisés en immersion dans l'eau à température ambiante. Les phases de séchage ont été effectuées en étuve à 50°C, durant 1 jour chacune. Les composites de l'étude ont été sollicités en traction monotone. La Figure I.24 montre les courbes contrainte-déformation des composites sisal/époxy (Figure I.24a) et sisal/vinylester (Figure I.24b) non vieillis et après différents nombres de cycles de fatigue hydrique (1 à 5).

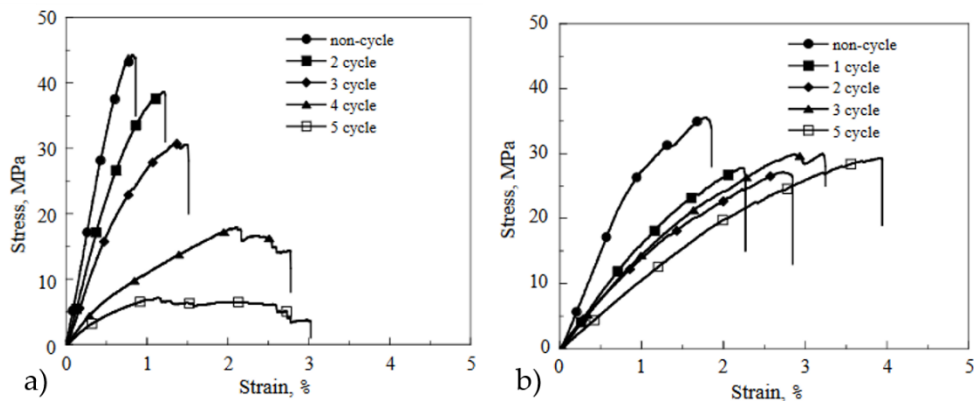


Figure I.24 : Courbes contrainte-déformation après différents nombres de cycles de fatigue hydrique (0 à 5) de composites à renfort de sisal et à matrice a) époxy et b) vinylester [80].

Le vieillissement par fatigue hydrique a un impact direct sur les propriétés mécaniques en traction des matériaux de l'étude : abaissement de la rigidité et de la contrainte à rupture et forte augmentation de l'allongement à rupture. Ces évolutions de propriétés mécaniques en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique sont expliquées par une dégradation des fibres de sisal, de la matrice ainsi que de l'interface fil/matrice.

L'étude de Mak et Fam [82] porte sur le vieillissement de matériaux composites à renfort unidirectionnel de lin et matrice époxy, notés EF, par fatigue hydrique. Une autre résine, un mélange d'huile de pin époxydée et de bisphénol A/F, nommée P, est aussi utilisée et deux types de procédés de fabrication sont comparés (infusion sous vide - VB, et imprégnation au contact - WL). Le protocole de fatigue hydrique consiste à immerger les composites dans de l'eau à température ambiante puis à les sécher en étuve à 60°C pendant douze cycles de fatigue hydrique (Tableau I.3). Les résultats de l'étude sont comparés à des éprouvettes composites à renfort de verre, notés EG et PG, ayant suivi le même protocole de fatigue hydrique et d'essai mécanique.

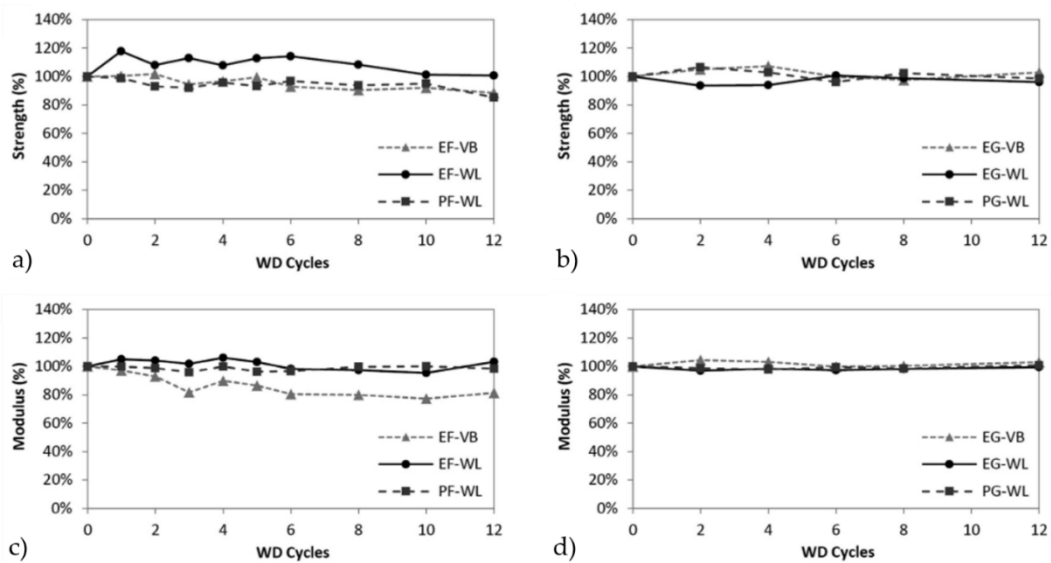


Figure I.25 : Contrainte à rupture normée (a et b) et module élastique normé (c et d) de composites à renfort de lin (EF et PF) et à renfort de verre (EG et PG) [82].

Les pertes en propriétés mécaniques sont faibles, même après 12 cycles de fatigue hydrique : de l'ordre de 15% à 20% pour les composites à renfort de lin (Figures I.25a et I.25c) et inférieure à 10% pour ceux à renfort de verre (Figures I.25b et I.25d). Mak et Fam expliquent ces légères dégradations des composites à renfort de lin par des dissolutions de certains constituants de la fibre de lin ainsi qu'à une potentielle réaction d'hydrolyse, plus marquée sur la résine époxy. On peut s'interroger sur ces faibles pertes de propriétés mécaniques : l'absorption à saturation a-t-elle été atteinte à la suite de chacune des phases d'immersion ? Les variations dimensionnelles (épaisseur et largeur) ont-elles été prises en compte dans le calcul de la contrainte appliquée ?

Sodoke *et al.* [83] se sont également intéressés aux matériaux composites à renfort de lin et à matrice époxy dans le cadre d'un vieillissement par une série de 7 cycles de fatigue hydrique. Un assemblage de tissus quasi-isotrope $[0_2/90_2/\pm 45]_s$ compose les matériaux de l'étude. Les durées d'immersion dans de l'eau à température ambiante dépendent ici du temps nécessaire permettant d'atteindre la saturation en eau. Ce temps est de plus en plus court lorsque le

nombre de cycles de fatigue hydrique augmente, mais le comportement à l'absorption suit une loi de Fick, quel que soit le nombre de cycles de fatigue hydrique. Une première analyse sur les variations d'épaisseur des échantillons est effectuée et est confrontée aux variations de coefficient de diffusion de Fick de l'eau dans les composites étudiés. La Figure I.26 montre des tendances similaires entre l'augmentation de l'épaisseur des échantillons après chaque séchage et l'augmentation du coefficient de diffusion pour chaque cycle de fatigue hydrique. Quant au taux d'absorption à saturation en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique, il reste quasi-constant et passe de 14% pour le premier cycle à 16% lors du septième cycle.

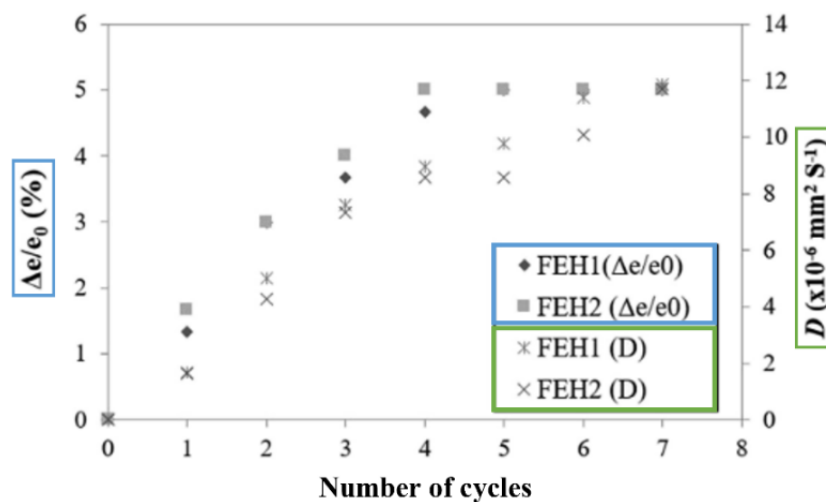


Figure I.26 : Variation d'épaisseur et coefficient de diffusion de Fick en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique (d'après [83]).

En termes de caractérisation mécanique, Sodoke *et al.* [83] réalisent des essais de traction monotone avec une vitesse de déplacement de traverse de 2 mm/min. Les courbes contrainte-déformation ainsi obtenues pour différents nombres de cycles de fatigue hydrique sont présentées en Figure I.27. Une diminution de la rigidité des composites est observée dès le premier cycle de fatigue hydrique. Cette décroissance a tendance à ralentir avec l'augmentation du nombre de cycles de fatigue hydrique. Une perte moins marquée est à noter concernant la contrainte à rupture.

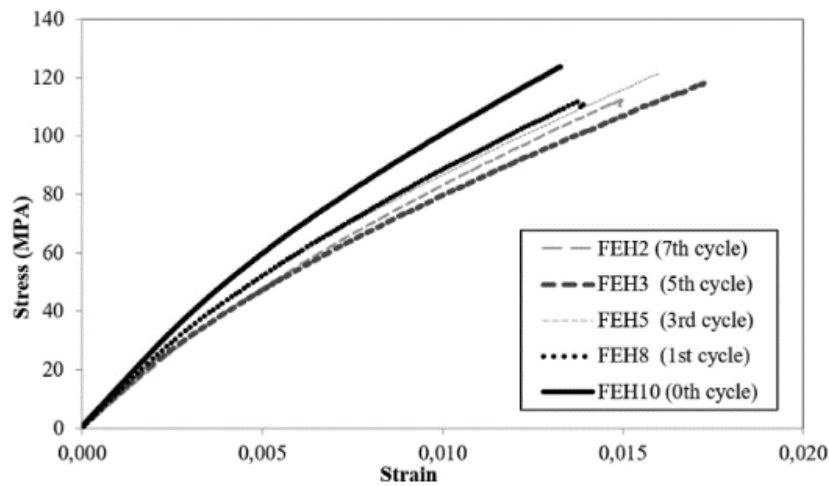


Figure I.27 : Courbes contrainte-déformation de composites lin/époxy après 0, 1, 3, 5 et 7 cycles de fatigue hydrique [83].

Freund [81] et Cadu *et al.* [84] ont quant à eux fait le choix d'un vieillissement de fatigue hydrique en milieu contrôlé en humidité relative. Dans l'étude de Freund [81], une résine thermoplastique développée par *Arkema*, de la gamme Elium, a été utilisée. Avec cette résine, des composites à renfort de lin et de verre unidirectionnel ont été fabriqués. La durée des cycles de fatigue hydrique est variable, mais l'absorption à saturation a systématiquement été atteinte à l'issue de chaque cycle, en suivant également un comportement fickien. Concernant le coefficient de diffusion de Fick, il a été observé que celui-ci augmente linéairement avec le nombre de cycles de fatigue hydrique dans le cas des composites lin/Elium. En revanche, dans le cas des composites verre/Elium, le coefficient de diffusion semble légèrement diminuer avec le nombre de cycles de fatigue hydrique. De même que dans les études précédentes, le taux d'absorption à saturation reste constant pour chaque cycle de fatigue hydrique. Il avoisine les 3,5% pour les composites lin/Elium et les 0,4% pour les composites à renfort de verre. La Figure I.28 montre les courbes contrainte-déformation issues d'essais de traction monotone sur les composites à renfort de lin (Figure I.28a) et de verre (Figure I.28b) avant fatigue hydrique et après 5 cycles de fatigue hydrique. Les composites verre/Elium sont nettement moins impactés par le vieillissement. En revanche, les composites lin/Elium voient une perte de leur rigidité, de leur contrainte à rupture ainsi que de leur allongement à rupture. On peut remarquer que dans cette étude, les fibres de lin, fortement dégradées par la succession de cycles de fatigue hydrique, sont une des causes des pertes en propriétés mécaniques des composites lin/Elium, d'autant plus que la température de vieillissement est la plus élevée de la littérature ($T_{imm} = T_{séch} = 80^{\circ}C$). Cela implique une forte dégradation de l'interface fil/matrice, phénomène bien moins présent dans les composites verre/Elium.

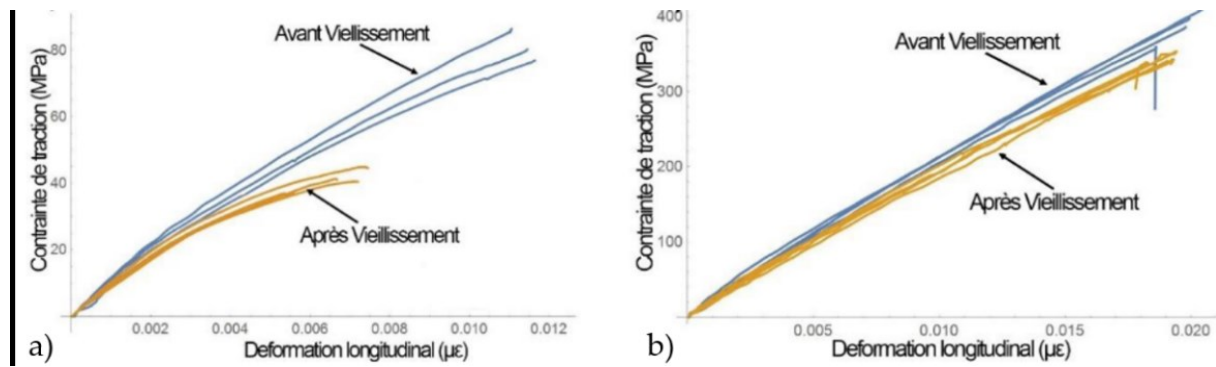


Figure I.28 : Courbes contrainte-déformation avant et après fatigue hydrique (0 et 5 cycles) pour des composites lin/Elium et verre/Elium [81].

Cadu *et al.* [84] ont procédé à du vieillissement par fatigue hydrique sur une année complète en réalisant des cycles d'absorption/désorption durant une semaine chacun. Le matériau de l'étude est constitué de tissus unidirectionnels de lin et d'une matrice époxy. La mise en œuvre des composites a été réalisée par thermocompression [85]. Des essais de traction monotone dans la direction des fibres ont été effectués avec une vitesse de déplacement de traverse de 1 mm/min. Deux modules, E_1 et E_2 , ont été extraits respectivement en début et en fin de courbe contrainte-déformation. La Figure I.29 présente l'ensemble des propriétés mécaniques obtenues après une année de vieillissement pour différents nombres de cycles de fatigue hydrique. Une perte d'environ 17% a été observée concernant la contrainte à rupture (Figure I.29a) et la déformation à rupture diminue jusqu'à 25% à l'issue de la fatigue hydrique (Figure I.29b). Pour les modules E_1 et E_2 , le principal de la perte se produit dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique avec une diminution de 15% (Figure I.29c). Tout au long de la suite du vieillissement, les modules E_1 et E_2 semblent stabilisés.

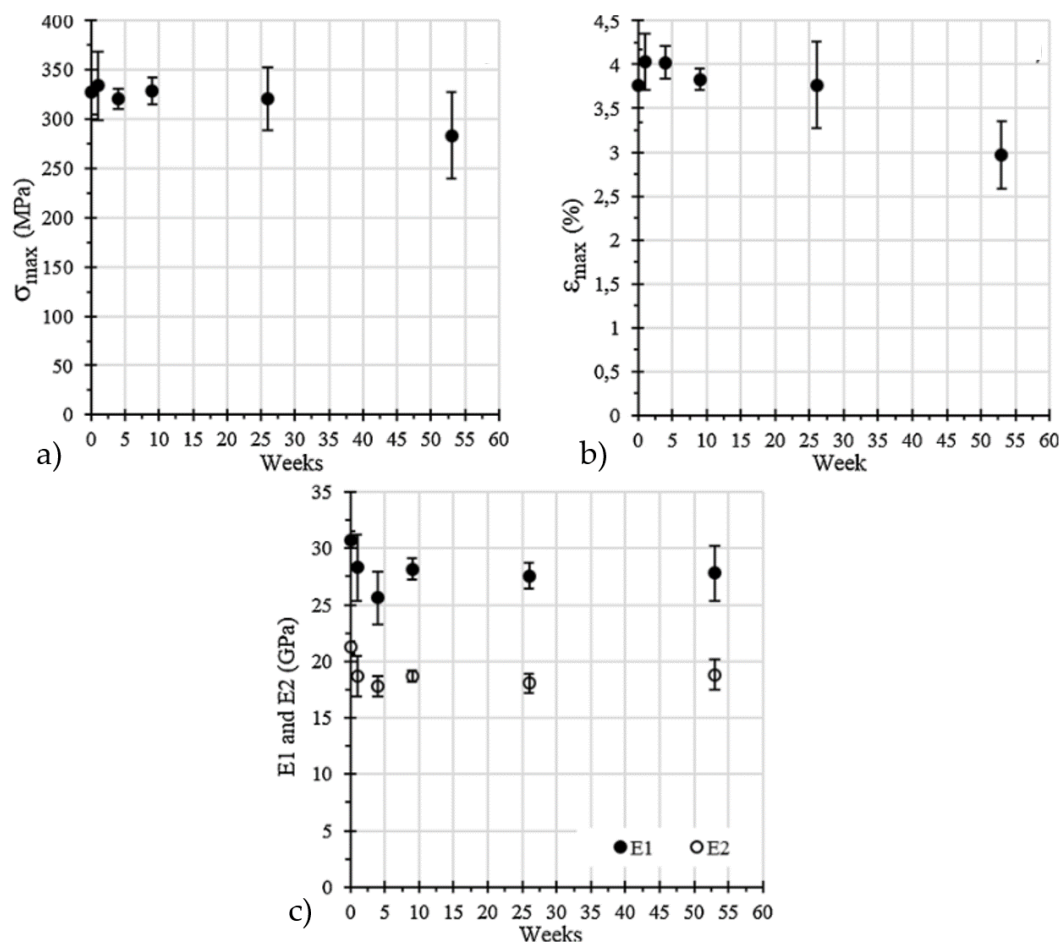


Figure I.29 : Évolution des propriétés mécaniques de composites UD lin/époxy en fonction du nombre de semaines de fatigue hydrique. a) Contrainte à rupture, b) déformation à rupture et c) modules E_1 et E_2 [84].

Afin d'expliquer ces évolutions de propriétés mécaniques, l'étude s'est notamment intéressée à la quantité d'hémicellulose et de pectine présente dans les fibres de lin en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique. Pour cela, des mesures de cristallinité des fibres de lin par diffraction des rayons X ont été effectuées et ont montré une augmentation de la cristallinité en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique (Figure I.30a). Cela signifie donc une perte de constituants amorphes, tels que l'hémicellulose (Figure I.30b).

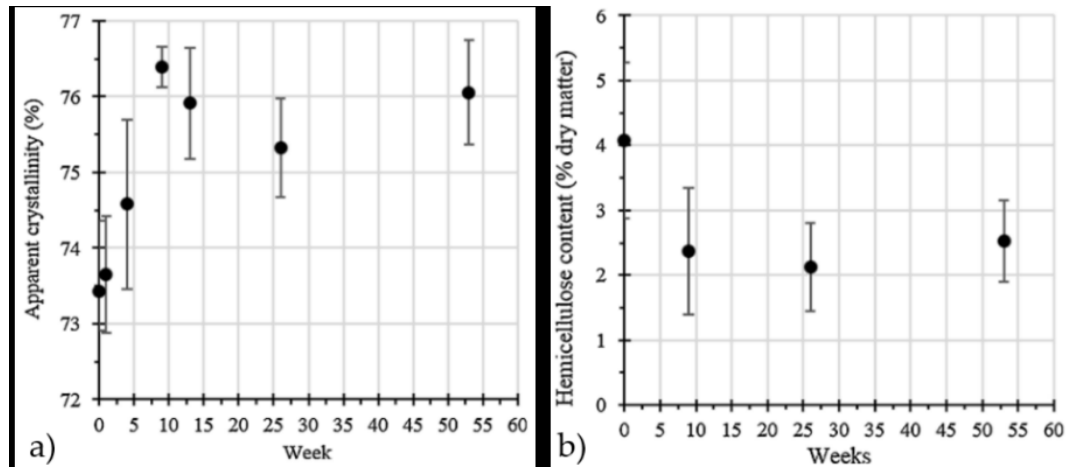


Figure I.30 : a) Cristallinité et b) quantité d'hémicellulose dans les fibres de lin en fonction de la durée du vieillissement par fatigue hydrique [84].

Cependant, ces pertes de constituants n'expliquent pas à elles seules les pertes des propriétés mécaniques observées à l'échelle macroscopique. Des acquisitions d'images au microscope électronique à balayage réalisées après rupture en traction ont aussi montré un net développement des décohésions fil/matrice ainsi qu'un nombre croissant de fissures matricielles au sein des composites au fur et à mesure de la fatigue hydrique. Toutefois, on peut noter que les observations effectuées post-mortem ne permettent pas de distinguer les conséquences de la fatigue hydrique de celles des essais mécaniques, ni d'expliquer la stabilisation des modules au-delà des premières semaines de fatigue hydrique.

Bilan sur l'état de l'art

Les composites à renfort végétal et/ou à matrice bio-sourcée sont de plus en plus utilisés dans l'industrie et cela permet de répondre à certaines des recommandations des derniers rapports du GIEC : utiliser des matériaux responsables, diminuer l'impact sur l'environnement du cycle de vie d'un produit, réduire la consommation d'énergie fossile, etc.

En revanche, l'utilisation de renforts végétaux dans les polymères amènent des problématiques physiques nouvelles. En particulier, le comportement de l'interface renfort/matrice est fortement perturbé du fait de l'importante hydrophilie des fibres végétales. De plus, la compatibilité physico-chimique entre les renforts végétaux et les matrices utilisées n'est pas encore totalement maîtrisée.

Dans la littérature, de plus en plus de publications traitent des propriétés mécaniques des composites à renfort végétal soumis à des vieillissements hydriques sur du plus ou moins long terme. Deux types de vieillissement hydrique sont à distinguer : les vieillissements hydriques statiques et cycliques (fatigue hydrique). Le premier est déjà largement étudié par l'immersion prolongée de ce type de composite dans des environnements humides et la caractérisation mécanique (statique et cyclique) de ceux-ci. En revanche, pour des applications extérieures telles que des pales d'éolienne, de la carrosserie automobile ou ferroviaire ou du loisir, les variations d'humidité sont à prendre en compte. Or, peu d'études traitent de la fatigue hydrique et de ses conséquences sur les propriétés mécaniques et les mécanismes d'endommagement de composites à renfort végétal. De plus, chaque étude applique des protocoles de fatigue hydrique différents ce qui rend difficile toute comparaison. L'intérêt de la thèse vient également du choix du renfort : le chanvre. Admettant des propriétés mécaniques équivalentes à celles du lin, il a l'avantage d'être cultivable sans nécessité d'intrants chimiques polluants et est très peu gourmand en eau. Son coût, de la production à la fabrication du tissu, s'avère être aussi moins élevé que celui d'autres fibres issues du végétal.

II. Matériaux et techniques employées

Ce deuxième chapitre est consacré à la description des matériaux utilisés durant la thèse ainsi que les techniques et moyens expérimentaux employés. La fabrication des différents types d'éprouvettes permettant une étude multi-échelle (résines pures, éprouvettes monofilamentaires et éprouvettes rectangulaires de composite tissé) sera présentée. Ensuite, le matériel utilisé pour la fatigue hydrique sera présenté, puis les moyens de caractérisation mécanique de l'ensemble des éprouvettes seront détaillés. Enfin, les techniques d'observation et d'analyse des endommagements utilisées seront décrites.

II.1 Fabrication des composites

II.1.1 Résines

Deux résines polymères thermodurcissables de type époxy et une résine thermoplastique sont utilisées. La première résine époxy, classiquement utilisée, est dénommée Epolam 2020 et est produite par la société *Axson Technologies* [86]. L'autre résine époxy est partiellement bio-sourcée et constituée de 56% d'atomes de carbone d'origine végétale [87]. Elle se nomme Greenpoxy 56 et a été fournie par la compagnie *Sicomini*. Enfin, la résine thermoplastique est à base de méthacrylate de méthyle (MMA) et elle se nomme Elium 188 (*Arkema*) [88]. Cette résine connaît un essor important ces dernières années et est notamment utilisée dans la fabrication de pales d'éolienne dans le cadre du projet EFFIWIND [89], [90]. Dans le cadre de la thèse, l'ensemble des composites tissés constitué de résine Elium a été fabriqué par la société *Arkema* à partir des tissus fournis.

La résine Epolam 2020, notée Epolam ou EP dans la suite du manuscrit, couplée à un durcisseur et un accélérateur, est un système chimique permettant la mise en œuvre de structures composites par différents procédés de fabrication tels que l'injection et l'imprégnation au contact. Les proportions de mélange résine/durcisseur indiquées par la fiche technique sont 100 grammes de résine pour 34 grammes de durcisseur. Dans le cadre de la thèse de Barbière [13], une optimisation du taux d'accélérateur a été effectuée afin d'obtenir les meilleures performances mécaniques de la résine et une température de transition vitreuse maximisée. Concernant cette dernière caractéristique, 2 grammes d'accélérateur ajoutés au précédent mélange permettent d'atteindre une température de transition vitreuse de $89 \pm 1^\circ\text{C}$. Les proportions résine/durcisseur/accélérateur utilisées dans le cadre de la thèse sont donc de 100/34/2 grammes. La résine Greenpoxy 56, notée Greenpoxy ou GP dans la suite du manuscrit, est également une époxy. Lors de sa mise en œuvre, le fabricant recommande la réalisation d'un mélange résine/durcisseur de 100/42 grammes. Le *pot life*² de la résine étant suffisamment court, l'utilisation d'un accélérateur n'était pas nécessaire. Enfin, la résine thermoplastique Elium 188 (notée Elium ou EL) est notamment constituée d'un mélange de méthacrylate de méthyle et de citral. Un initiateur est utilisé contenant du peroxyde de dibenzoyl et mélangé à hauteur de 3% en masse à la résine. Pour pouvoir caractériser mécaniquement l'ensemble des résines polymères, des éprouvettes de résines pures ont été fabriquées au laboratoire à l'aide de moules permettant une mise en œuvre par injection à température et pression ambiante. Les moules (Figure II.1) ont été usinés au laboratoire et sont constitués de trois parties : une empreinte en alliage d'aluminium et deux plaques en téflon, le tout assemblé par des vis.

² Le *pot-life* est la durée pendant laquelle la résine admet une viscosité suffisamment faible pour qu'elle soit mise en œuvre [91].

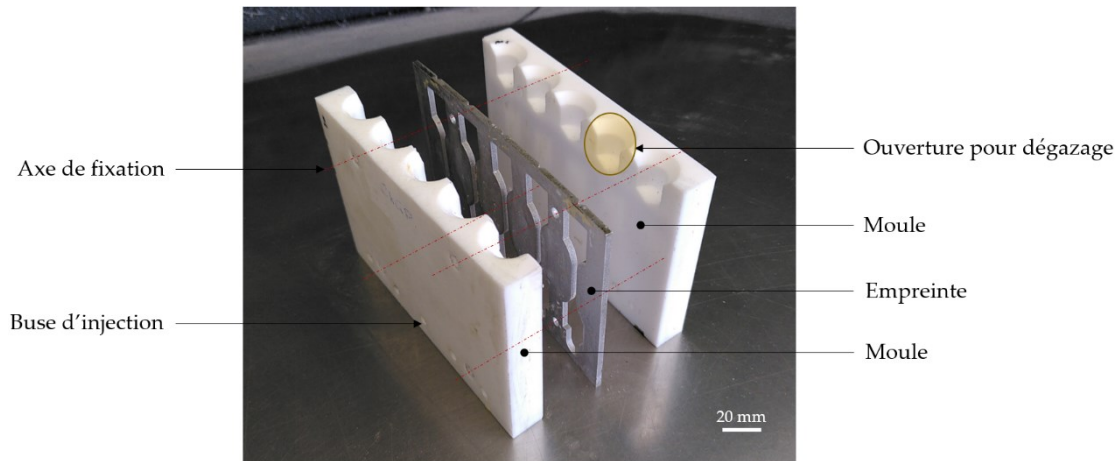


Figure II.1 : Moule développé au laboratoire pour la fabrication d'éprouvettes de résine pure et d'éprouvettes monofilamentaires.

L'étanchéité du montage est assurée par l'application d'un joint de la marque *Tacky Tape*® à la périphérie du moule (haut du moule exclu) et par du ruban Téflon déposé sur la partie filetée des vis. L'injection de la résine se fait par des orifices situés dans la partie inférieure de chaque moule (buses d'injection). La partie supérieure des moules est quant à elle laissée à l'air libre, permettant au dégazage des résines de se faire à pression atmosphérique. Suite à l'injection de la résine, un temps de repos de 2 à 3 jours a été respecté avant le démoulage. Ce type de moule a été utilisé pour la fabrication d'éprouvettes de résine pure et d'éprouvettes monofilamentaires. La géométrie de ces éprouvettes est définie en Figure II.2 avec un fil au centre de l'éprouvette dans le cas des éprouvettes monofilamentaires.

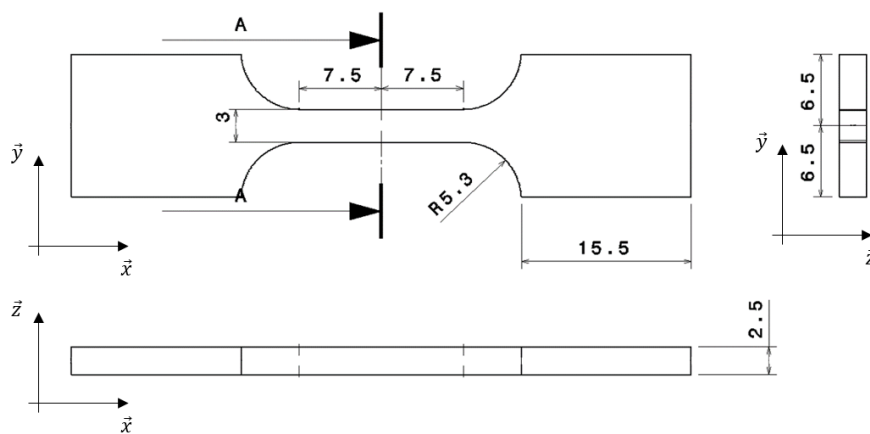


Figure II.2 : Géométrie des éprouvettes de résine pure et des éprouvettes monofilamentaires (longueurs exprimées en millimètres).

Des cycles de cuisson adaptés à chacune des résines ont ensuite été effectués en étuve. Le cycle de cuisson permet de finaliser la polymérisation des résines thermodurcissables. Dans le cas de la résine thermoplastique Elium, le cycle de cuisson permet de maximiser les performances

mécaniques et d'atteindre un comportement à la traction similaire à celui des résines thermodures [92]. La Figure II.3 présente sous forme de graphique les différents cycles de cuissons réalisés dans le cadre de la thèse. La résine Elium est donc cuite pendant 4 heures à 80°C. Le traitement thermique de la résine Epolam a été spécifiquement développé dans le cadre de la thèse de Bonnafous [10] afin de garantir une réticulation maximale de celle-ci. Il comporte différents paliers de température : 3 heures à 40°C, 2 heures à 60°C, 2 heures à 80°C et 4 heures à 100°C. Perrier [12] a développé le cycle thermique de la résine Greenpoxy dans le cadre de sa thèse, dans le but également de maximiser la réticulation de la résine. Le cycle consiste à chauffer la résine pendant 24 heures à 40°C, 16 heures à 60°C, 8 heures à 80°C et 30 minutes à 95°C.

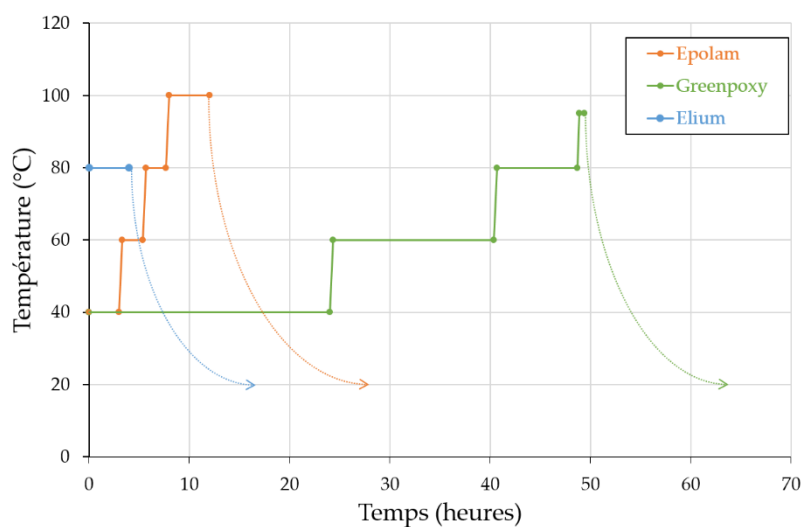


Figure II.3 : Cycles de cuissons des résines Epolam, Greenpoxy et Elium.

Ces cycles ont été validés par analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC). Dans le cadre de cette thèse, des analyses DSC ont été réalisées sur chacune des résines afin de vérifier les gammes de température de transition vitreuse obtenues. Pour cela, une étude préliminaire a été effectuée afin de déterminer les paramètres de DSC adaptés aux problématiques de la thèse. Les paramètres de DSC choisis doivent permettre le suivi de l'évolution des températures de transition vitreuse quel que soit l'état de vieillissement des matériaux étudiés, c'est-à-dire :

- sec, après cuisson,
- saturé en eau,
- après i cycles de fatigue hydrique.

Le principe de l'analyse calorimétrique différentielle à balayage consiste à suivre l'évolution de la quantité de chaleur absorbée ou émise par un échantillon par rapport à une référence, inerte, soumise aux mêmes conditions de température. Cette technique permet ainsi de

détecter les changements d'états physiques des matériaux (transition de phase, relaxation des polymères, fusion, recristallisation, évaporation, transition vitreuse, etc.). L'appareil de mesure de DSC est le modèle Q20 de la société *TA Instruments*. Il est associé à un système de refroidissement *RCS 90*. Il permet d'atteindre une gamme de température allant de -90°C à 550°C dans l'enceinte contenant les échantillons à étudier [93]. L'analyse DSC a été réalisée en mode « modulé ». Par rapport au mode standard, où la variation temporelle de la température est linéaire, le mode modulé permet d'obtenir une évolution sinusoïdale de la température en fonction du temps. La modulation de la température est définie par l'équation II.1 :

$$T = T_0 + b \times t + A \times \sin\left(\frac{2\pi}{P} \times t\right) \quad (\text{II.1})$$

avec T la température ($^{\circ}\text{C}$), T_0 la température initiale ($^{\circ}\text{C}$), t le temps (min), b la vitesse de chauffe moyenne ($^{\circ}\text{C}/\text{min}$), A et P l'amplitude ($^{\circ}\text{C}$) et la période (min) de modulation.

L'analyse DSC passe par le suivi du flux de chaleur total émanant du matériau chauffé. Ce flux total (équation II.2) est la somme de deux composantes. La première, nommée « *Reversing heat flow* », est associée à la capacité calorifique et permet notamment d'identifier la transition vitreuse (T_g) des polymères. La seconde, nommée « *Non-reversing heat flow* », représente les événements cinétiques tels que la cristallisation froide, la relaxation structurale, l'évaporation de l'eau ou une post-réticulation. Travailler en DSC modulée permet donc de distinguer différents phénomènes et ainsi, via une combinaison de paramètres adaptée, de déterminer T_g quel que soit l'état de vieillissement du matériau.

$$\frac{dH}{dt} = C_p \times \frac{dT}{dt} + f(T, t) \quad (\text{II.2})$$

où $\frac{dH}{dt}$ est le flux de chaleur total et C_p est la capacité calorifique du matériau.

L'analyse paramétrique a permis de fixer les paramètres de l'équation II.1 qui sont présentés dans le Tableau II.1. Les températures de transition vitreuse issues des premières analyses DSC sur les trois résines de l'étude après fabrication et cuisson sont présentées dans le Tableau II.2. Les données issues des fiches techniques des résines thermodurcissables sont légèrement inférieures à celles obtenues par DSC suite à l'optimisation des cycles thermiques [86], [87]. Ceci valide les traitements thermiques appliqués. En revanche, la fiche technique d'*Arkema* estime une valeur de T_g supérieure à celle obtenue dans cette étude [88]. Une optimisation de la cuisson de la résine Elium, non réalisée dans le cadre de la thèse, aurait probablement augmenté la T_g .

Tableau II.1 : Paramètres pour l'analyse DSC en mode modulé.

Paramètre DSC	Notation	Valeur	Unité
Vitesse moyenne de chauffe	b	10	°C/min
Amplitude du signal	A	0,796	°C
Période du signal	P	30	s

Tableau II.2 : Températures de transition vitreuse (T_g) des résines Epolam, Greenpoxy et Elium mesurées par DSC modulée après fabrication et cuisson.

Résine	Epolam	Greenpoxy	Elium
Température de transition vitreuse (°C)	83,0 ± 0,5	82,4 ± 0,5	91,4 ± 0,5

II.1.2 Éprouvettes monofilamentaires

La fabrication des éprouvettes monofilamentaires a également été réalisée au laboratoire Pprime. La méthode reste la même que celle pour les éprouvettes de résine pure. Ici, une étape supplémentaire a lieu ; elle consiste à mettre en position un fil issu des tissus de l'étude au centre des empreintes du moule. Ce fil a été tendu de la même manière à chaque infusion en fixant une extrémité du fil sur le moule et en appliquant un même effort de l'ordre de 0,5 N à l'autre extrémité du fil. Des éprouvettes monofilamentaires ont été fabriquées avec des fils de chanvre associés aux résines Epolam et Greenpoxy, notées respectivement MChEP et MChGP.

II.1.3 Composites tissés

Les composites tissés ont été fabriqués par le procédé d'infusion sous vide. La Figure II.4 montre un schéma de l'empilement des tissus et des consommables nécessaires à la fabrication de plaques de dimensions surfaciques d'environ 350 mm par 250 mm. Sept plis de tissus sont disposés sur une plaque support, préalablement traitée permettant de faciliter le décollement du composite à la fin de la fabrication. Un tissu d'arrachage est placé sur les sept plis de tissu de chanvre ou de verre, permettant également de faciliter le démoulage. Une grille de drainage positionnée sur l'empilement de tissus permet d'homogénéiser le flux de résine pendant l'infusion, *i.e.* d'avoir un front d'infusion rectiligne et perpendiculaire à la direction d'infusion. Enfin, une bâche à vide est placée par-dessus l'ensemble du montage et est fixée par un joint *Tacky Tape*®. Le joint assure également l'étanchéité du montage. Sur la Figure II.4, le point d'infusion est symbolisé par la flèche verte et celui du tirage du vide par la flèche rouge.

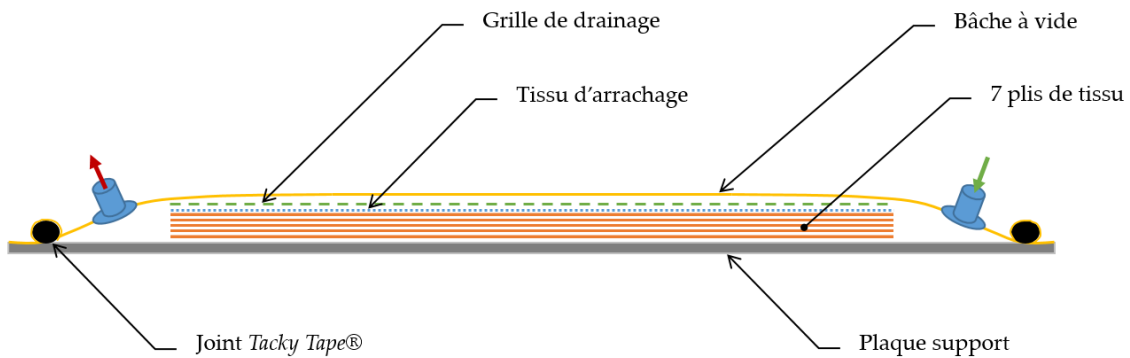


Figure II.4 : Schématisation du principe de l'infusion sous vide (flèche verte : entrée de la résine, flèche rouge : tirage du vide).

Les tissus utilisés dans le cadre de la thèse sont des tissus de chanvre et de verre d'un grammage (m_0^f) de, respectivement, $290 \pm 10 \text{ g/m}^2$ et $280 \pm 5 \text{ g/m}^2$. Les tissus de chanvre ont été fournis par l'entreprise *Naturellement chanvre* et ceux de verre par la société *Sicomini*. Quelle que soit la nature des fils, les tissus sont du type toile (Figure II.5a). Des photographies des tissus de chanvre et de verre sont montrées en Figures II.5b et II.5c.

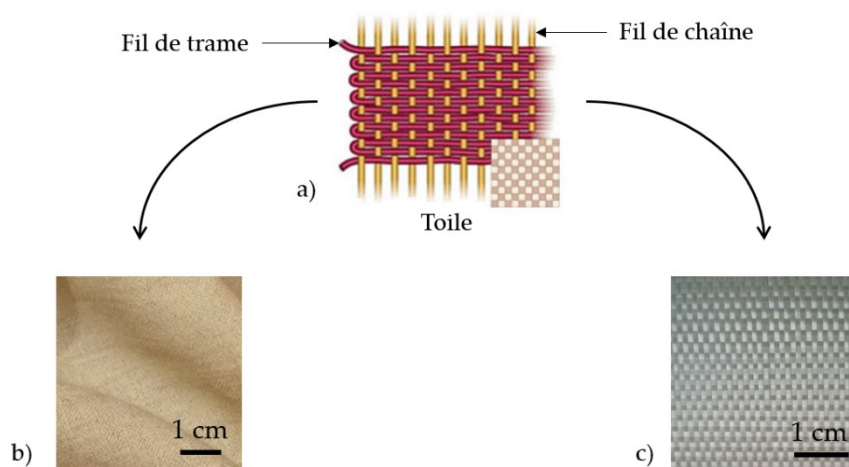


Figure II.5 : a) Schématisation d'un tissu du type toile et photos des tissus de b) chanvre et de c) verre.

À l'issue de la fabrication des plaques en composites à renfort de chanvre et de verre, des cycles de cuisson ont été appliqués, tel que décrit en partie II.1.1 en fonction de la résine polymère employée. Ensuite, des éprouvettes ont été extraites des plaques de manière à perdre le moins de matière possible. La découpe des éprouvettes a été réalisée à l'aide d'une fraiseuse de bureau de la marque *Haas* dans l'atelier d'usinage du laboratoire (Figure II.6).



Figure II.6 : Fraiseuse de bureau Haas utilisée pour la découpe des composites tissés.

Deux orientations de tissu ($\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$) ont été obtenues après découpe afin d'étudier des composites tissés du type $[\pm 45]_7$ et $[0/90]_7$. Ces deux orientations permettent de solliciter de différentes manières les composites : d'une part, les éprouvettes $[0/90]_7$ sollicitent principalement les fils de chaîne, d'autre part, les éprouvettes $[\pm 45]_7$ permettent de favoriser le cisaillement en sollicitant également l'interface renfort/matrice. Dans la suite du manuscrit, la nomenclature décrite dans le Tableau II.3 sera suivie pour identifier l'ensemble des composites tissés. Seule la résine Epolam a été renforcée par le tissu de verre.

Tableau II.3 : Nomenclature des couples renfort/matrice considérés pour la fabrication des composites tissés.

Tissu (orientation)	Matrice		
	Epolam	Greenpoxy	Elium
Chanvre ($\pm 45^\circ$)	ChEP ± 45	ChGP ± 45	ChEL ± 45
Chanvre ($0^\circ/90^\circ$)	ChEP $0/90$	ChGP $0/90$	ChEL $0/90$
Verre ($\pm 45^\circ$)	VeEP ± 45	-	-
Verre ($0^\circ/90^\circ$)	VeEP $0/90$	-	-

La géométrie des composites tissés est décrite en Figure II.7. Les éprouvettes à renfort de chanvre ont une épaisseur supérieure à celles à renfort de verre du fait que le tissu de verre est constitué de fils de diamètres inférieurs à ceux constituant le tissu de chanvre. La zone utile mesure 80 mm de long. Les zones hachurées représentent les portions d'éprouvette serrées dans les mors de la machine de traction. La Figure II.8 montre une photographie des quatre matériaux étudiés.

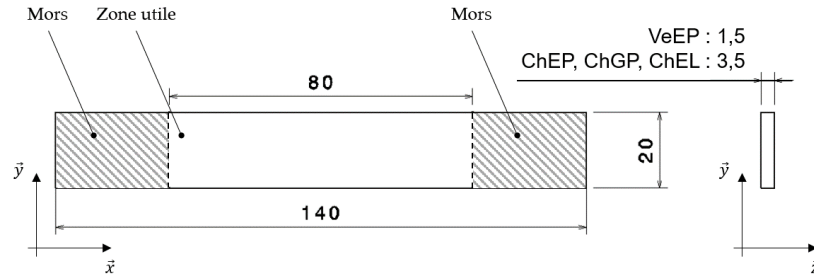


Figure II.7 : Géométrie des éprouvettes de composites tissés à renfort de chanvre ou de verre (longueurs exprimées en millimètres).

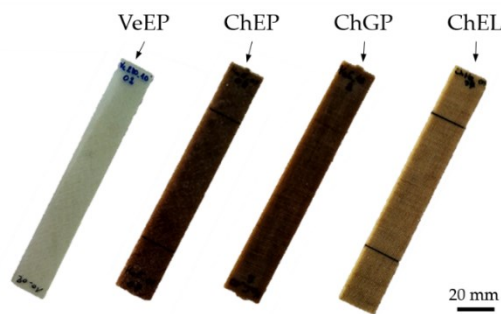


Figure II.8 : Exemples d'éprouvettes de composites tissés à renfort de verre et de chanvre.

Une fois les éprouvettes prêtes à être utilisées, leur taux volumique de fibres (v_f) et leur taux massique de fibre (m_f) ont été déterminés par pesée à l'aide d'une balance de précision et par mesure géométrique à l'aide d'un pied à coulisse. Les équations suivantes (équations II.3, II.4, II.5 et II.6) ont été utilisées. Les données d'entrée intervenant dans les équations qui suivent sont le grammage des tissus (m_0^f) précisé précédemment et la masse volumique des fibres (ρ_f) de chanvre et de verre qui, d'après la littérature, valent respectivement $1,48 \text{ g/cm}^3$ et $2,55 \text{ g/cm}^3$ [17].

$$\rho_c = \frac{M_c}{V_c} \quad (\text{II.3})$$

$$v_f = m_f \times \frac{\rho_c}{\rho_f} \quad (\text{II.4})$$

$$m_f = \frac{n \times m_0^f}{\rho_c \times e_c} \quad (\text{II.5})$$

$$v_f = \frac{n \times m_0^f}{\rho_f \times e_c} \quad (\text{II.6})$$

où e_c est l'épaisseur de l'échantillon mesurée avec un pied à coulisse, n est le nombre de plis fixé lors de la fabrication des éprouvettes ($n = 7$) et M_c est la masse d'une éprouvette pesée à l'aide de la balance de précision. Les taux volumique et massique de fibres de l'ensemble des

matériaux de l'étude sont donnés dans le Tableau II.4. Il est important de noter que les taux volumiques de fibre sont voisins quel que soit le matériau étudié. Cela permet de justifier les comparaisons à venir tout au long de l'étude. Il est à noter que le taux de porosité n'est pas pris en compte car, comme on le verra plus loin par microtomographie, il est négligeable (< 1%).

Tableau II.4 : Taux volumique et massique de fibres (%) des composites étudiés.

Taux	Composite			
	VeEP	ChEP	ChGP	ChEL
Taux volumique de fibres v_f (%)	47,0 ± 2,5	40,3 ± 2,4	41,8 ± 1,7	39,7 ± 1,6
Taux massique de fibres m_f (%)	66,2 ± 2,7	46,2 ± 2,6	46,5 ± 1,9	44,6 ± 0,3

II.2 Méthode pour la fatigue hydrique

Dans cette partie, une présentation du matériel développé et utilisé pour réaliser le vieillissement par fatigue hydrique est effectuée. Afin de suivre l'évolution des propriétés à l'absorption des matériaux composites tout au long de la fatigue hydrique, la formulation de la diffusion de l'eau dans les matériaux selon Fick a été adaptée ; les nouvelles équations et notations seront présentées.

II.2.1 Dispositif expérimental

La fatigue hydrique sera réalisée en immersion dans de l'eau portée à une température qui sera définie ultérieurement. Ce choix implique le développement d'un protocole précis, permettant un vieillissement sur le long terme, demandant des manipulations expérimentales répétables et une gestion des températures précise. La Figure II.9 montre le matériel qui a été mis en place pour réaliser le vieillissement des composites par fatigue hydrique. Plusieurs bacs en acier inoxydable d'une capacité de quatre litres ont été utilisés. L'objectif est d'immerger les échantillons dans de l'eau, à l'intérieur de ces bacs. Pour cela, plusieurs paniers à éprouvettes ont été fabriqués. Ces paniers doivent permettre d'accueillir suffisamment d'échantillons et de garantir un espace entre chaque éprouvette afin que la diffusion de l'eau dans les composites ne soit pas perturbée. De plus, ils doivent être faits de matériaux inoxydables, permettant un vieillissement par fatigue hydrique en immersion dans l'eau sur le long terme. Ainsi, les paniers à éprouvettes sont constitués de tôles perforées en acier inoxydable assemblées par des systèmes vis-écrous. Les tôles ont préalablement été découpées aux dimensions correspondant à celles des bacs et l'espace entre les différents étages des paniers est supérieur à la largeur d'une éprouvette. Des fils en acier inoxydable ont également

été disposés à travers les étages des paniers afin de créer des logements pour chaque éprouvette. Enfin, une poignée, en fil d'acier inoxydable, permet de retirer le panier de l'eau à tout moment (pesées, immersion, mise au séchage, etc.). Les paniers ont une capacité d'environ 45 éprouvettes de composites tissés. Quatre bacs et paniers ont été utilisés pour solliciter en fatigue hydrique les composites tissés (près de 150 éprouvettes au total), mais aussi les éprouvettes monofilamentaires, les éprouvettes de polymère pur et les fils de chanvre. La fatigue hydrique se fait ensuite en immergeant un panier d'éprouvettes dans l'eau des bacs. La montée en température de l'eau se fait en étuve : les bacs, refermés par un couvercle, sont placés dans une étuve dans laquelle la température est contrôlée. Une étude préliminaire a permis de vérifier l'homogénéité de la température au sein des bacs, ce qui assure un vieillissement par fatigue hydrique équivalent pour l'ensemble des matériaux quelle que soit leur position dans le bac. La capacité d'accueil d'une étuve est de quatre bacs.

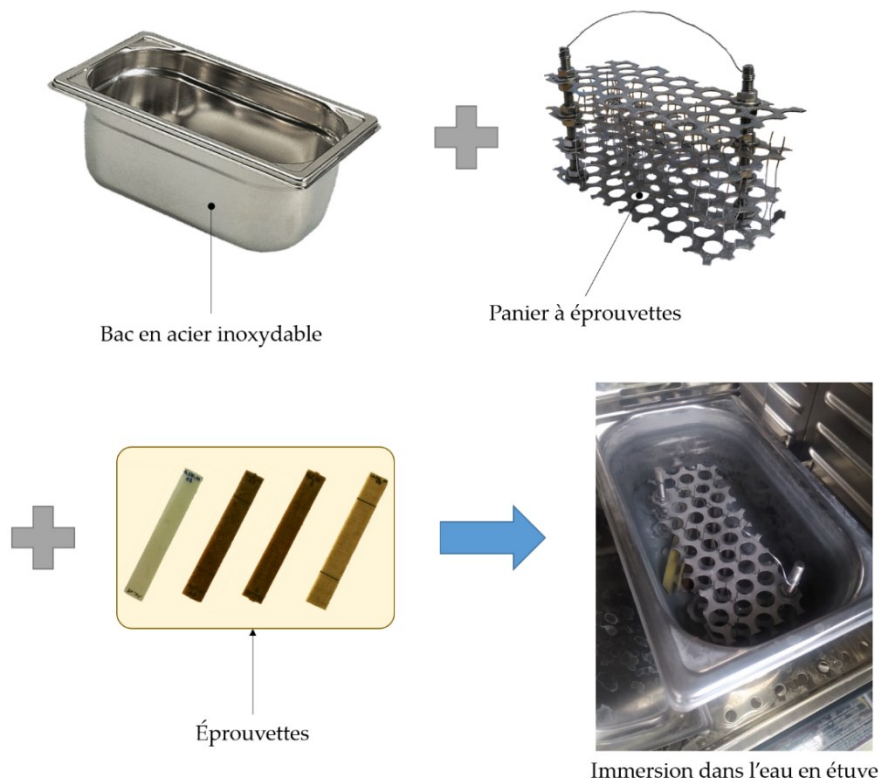


Figure II.9 : Matériel pour la fatigue hydrique et exemple d'une immersion de l'ensemble en étuve.

II.2.2 Formulation de la diffusion en fatigue hydrique

Un suivi gravimétrique a été réalisé pour l'ensemble des éprouvettes, tout au long de la fatigue hydrique. Une balance de précision de la marque *Sartorius* a été utilisée pour peser les échantillons à 10^{-4} g près. Le protocole de pesées se doit d'être précis et répétable pendant

l'ensemble de la fatigue hydrique. Les échantillons ont tous été pesés et mesurés avant leur intégration dans les cycles de fatigue hydrique. Une fois en phase d'immersion, les échantillons ont été pesés plusieurs fois par jour en début de cycle, puis de moins en moins souvent lorsque la saturation en eau approche. Ces pesées ont été réalisées de la manière suivante :

- ouverture de l'étuve,
- retrait du couvercle,
- levée du panier à éprouvettes via la poignée,
- retrait d'une éprouvette du panier,
- immersion du panier,
- fermeture de l'étuve,
- absorption de l'eau en surface de l'éprouvette retirée du panier par un papier absorbant pendant une durée d'environ 30 secondes,
- mesures éventuelles des dimensions de l'éprouvette avec un pied à coulisse, positionnement de l'éprouvette sur la balance de précision et temporisation de 30 secondes avant le relevé de la masse de l'échantillon,
- immersion de l'éprouvette pesée dans le bac,
- retrait d'une nouvelle éprouvette et répétition du protocole jusqu'à avoir pesé l'ensemble des éprouvettes,
- remise en place du couvercle et fermeture de l'étuve.

Ces pesées ont permis de suivre l'évolution de la prise en eau des matériaux pour l'ensemble des cycles de fatigue hydrique. Pour chaque cycle i de fatigue hydrique, la masse initiale des échantillons est celle mesurée au début du cycle considéré (c'est à dire à la fin du séchage du cycle précédent). Cette masse initiale est notée m_0^i , avec i le numéro du cycle de fatigue hydrique considéré. La masse des échantillons, mesurée lors du protocole précédemment décrit, est notée m_t^i et est définie comme étant la masse d'un échantillon, à l'instant t , pendant le cycle de fatigue hydrique numéro i . Ainsi, la variation de masse d'une éprouvette lors du cycle i , notée M_t^i , s'exprime selon l'équation II.7 :

$$M_t^i = \frac{m_t^i - m_0^i}{m_0^i} \quad (\text{II.7})$$

En plus d'un suivi gravimétrique, les dimensions des échantillons saturés en eau et séchés ont été mesurées à l'aide d'un pied à coulisse donnant ainsi accès aux variations géométriques des matériaux en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique. Ainsi, l'épaisseur des

échantillons, utile dans les équations de Fick, avant chaque immersion est notée e_0^i . Ainsi, e_0^1 est l'épaisseur d'une éprouvette avant le début de la fatigue hydrique, e_0^2 est l'épaisseur d'une éprouvette au début du 2^{ème} cycle de fatigue hydrique et e_0^i est l'épaisseur d'une éprouvette au début du $i^{\text{ème}}$ cycle de fatigue hydrique. Plus tard dans le manuscrit, il s'agira d'analyser et de comparer les évolutions de l'épaisseur des échantillons saturés et séchés. Les épaisseurs des échantillons saturés en eau seront notées e_∞^i avec i le nombre de cycles de fatigue hydrique. Dans le cadre de la reformulation des équations de diffusion de Fick, les équations I.8, I.9 et I.10 s'expriment selon les nouvelles équations II.8, II.9 et II.10 :

$$\frac{M_t^i}{M_\infty^i} = \frac{4}{e_0^i} \times \sqrt{\frac{D_i \times t}{\pi}} \quad (\text{II.8})$$

$$\frac{M_t^i}{M_\infty^i} = 1 - \exp\left(-7,3 \times \left(\frac{D_i \times t}{e_0^i{}^2}\right)^{3/4}\right) \quad (\text{II.9})$$

$$D_i = \pi \times \left(\frac{e_0^i \times k_i}{4 \times M_\infty^i}\right)^2 \quad (\text{II.10})$$

avec M_∞^i la variation relative de masse à saturation d'une éprouvette lors du cycle de fatigue hydrique numéro i , D_i le coefficient de diffusion de Fick du $i^{\text{ème}}$ cycle de fatigue hydrique et k_i la pente de la partie linéaire de la courbe expérimentale $M_t^i - \sqrt{t}$.

Ainsi, il est possible de caractériser, pour chaque cycle de fatigue hydrique, le comportement à l'absorption des matériaux, par son coefficient de diffusion D_i et par sa variation relative de masse à saturation M_∞^i lors du cycle i et de vérifier si la cinétique d'absorption suit le modèle de Fick unidirectionnel quel que soit le nombre de cycles de fatigue hydrique.

II.3 Moyens de caractérisation mécanique et mesures des déformations

Dans cette partie, les essais mécaniques réalisés sur les différents constituants et sur les matériaux composites sont décrits. Les moyens de mesures des déformations, avec ou sans contact, sont également présentés pour chaque type d'essai mécanique.

La section de chaque éprouvette a été mesurée à l'aide d'un pied à coulisse juste avant l'essai mécanique, afin de prendre en compte dans le calcul de la contrainte d'éventuelles variations géométriques.

II.3.1 Traction monotone et à chargements répétés progressifs

II.3.1.1 Essais sur fils de chanvre

Les fils de chanvre ont été caractérisés mécaniquement à l'aide d'une machine de traction de la société *Instron*, modèle 1195 (Figure II.10). Quel que soit leur conditionnement, les fils ont tous été extraits des tissus utilisés dans la fabrication des composites tissés. Une norme décrit la façon dont les essais de traction sur fils doivent être réalisés dans le cas des fibres de carbone (ISO 11566:1996). Les essais de traction sur fils de chanvre dans cette thèse sont adaptés de cette norme. La Figure II.10a montre un exemple d'un fil mis en place sur un support en papier, recouvert aux extrémités par une couche de papier abrasif, évitant ainsi tout glissement dans les mors de la machine de traction. Les extrémités du fil de chanvre sont maintenues en position au centre du support en papier à l'aide de colle. La longueur utile vaut 10 mm. La Figure II.10b montre l'exemple d'un essai de traction sur un fil de chanvre. Dans le cadre de ces essais mécaniques, une cellule de force d'une capacité de 500 N a été installée sur la machine de traction. Les essais de traction ont été contrôlés en vitesse de déplacement de traverse, fixée à 0,1 mm/min. La déformation axiale a été déterminée à partir du déplacement de la traverse. De ces essais, la contrainte à rupture, le module élastique apparent et la déformation apparente à rupture ont été relevés.

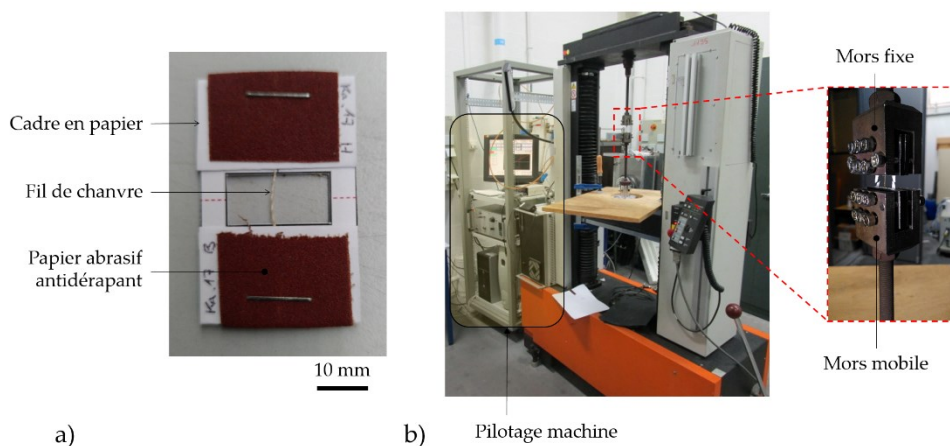


Figure II.10 : a) Fil dans son cadre en papier pour essai de traction et b) exemple d'une traction monotone sur fil de chanvre.

II.3.1.2 Essais sur résines

Les éprouvettes de polymère pur (Figure II.2) ont également été testées en traction monotone. Les essais de traction ont été réalisés sur une machine *Instron* 5982 équipée d'une cellule de force de 100 kN. Le contrôle des essais a été effectué en fixant la vitesse de

déplacement de la traverse à 0,1 mm/min. Ces essais de traction ont été instrumentés par un extensomètre à couteau d'une longueur de jauge de 12,5 mm donnant ainsi accès à la déformation axiale des éprouvettes en fonction de la contrainte appliquée.

II.3.1.3 Essais sur éprouvettes monofilamentaires

De la même manière que pour les éprouvettes de polymère pur, les éprouvettes haltères monofilamentaires ont été testées en traction monotone sur la machine de traction *Instron 5982* dans le but de réaliser des essais de fragmentation, tel que décrits en partie I.1.3. La vitesse de déplacement de traverse est dépendante du couple fil/résine. Une étude préliminaire a été effectuée afin de déterminer la vitesse permettant d'obtenir un nombre maximal de fragments en un temps d'essai raisonnable. Ainsi, les éprouvettes monofilamentaires MChEP et MChGP ont été sollicitées en traction avec une vitesse de déplacement de traverse de, respectivement, 0,01 mm/min et 0,0015 mm/min. Ces vitesses mènent à des essais d'une durée d'environ 2 heures pour les MChEP et de 13,5 heures pour les MChGP. Les essais de fragmentation ayant pour but d'analyser la qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice par ruptures successives du fil au sein de la matrice, aucune instrumentation n'a été placée sur les éprouvettes monofilamentaires.

II.3.1.4 Essais sur composites tissés

Les essais mécaniques sur les composites tissés sont des essais de traction à chargements répétés progressifs qui ont été réalisés sur la machine de traction *Instron 5982*. Ce type d'essai consiste à charger un échantillon jusqu'à une contrainte donnée, à le décharger puis à remonter en charge à un niveau plus élevé que précédemment. Entre 8 et 10 chargements successifs sont réalisés, jusqu'à la rupture totale de l'échantillon. Les essais mécaniques ont été pilotés à vitesse de déplacement de traverse constante et égale à 0,5 mm/min (à la charge et à la décharge), ce qui équivaut à une vitesse de déformation axiale environ égale à 1.10^{-4} s^{-1} . La charge minimale en fin de décharge a été fixée pour l'ensemble des composites tissés à 100 N, afin d'éviter l'apparition de contrainte de compression. Les essais ont été instrumentés par deux extensomètres : un extensomètre à couteaux d'une longueur de jauge de 12,5 mm permettant d'accéder à la déformation axiale de l'échantillon en cours d'essai et un extensomètre bidimensionnel d'une longueur de jauge axiale de 25 mm et qui mesure les variations de largeur. Ces deux extensomètres permettent une double mesure de la déformation axiale. En assurant une mesure de la déformation axiale par au moins un extensomètre, il a été possible d'économiser le nombre d'éprouvettes testées et ainsi d'augmenter le nombre de conditionnements testés. Des capteurs d'émission acoustique ont également été installés afin de suivre l'évolution de l'endommagement des composites tissés

en fonction de l'avancée des essais de traction à chargements répétés progressifs. L'analyse et la description des données d'émission acoustique seront détaillées dans la partie II.4.1. La Figure II.11 montre le montage des extensomètres et des capteurs d'émission acoustique sur une éprouvette de composite tissé. La détermination des propriétés mécaniques en traction de l'ensemble des composites de l'étude suit la norme ASTM D 3039.

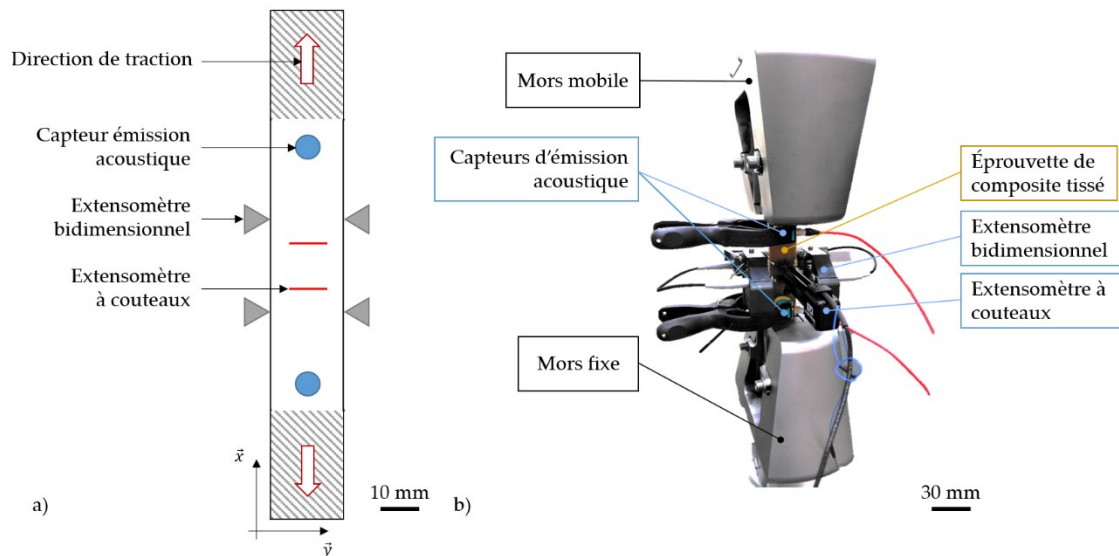


Figure II.11 : a) Schéma et b) photographie du montage d'une éprouvette de composite tissé pour essai de traction à chargements répétés progressifs.

La Figure II.12a schématise une courbe contrainte-déformation d'un essai de traction à chargements répétés progressifs. De ces courbes, il est ainsi possible d'extraire, dans la partie linéaire, le module élastique initial, noté E_0^i , où i est le nombre de cycles de fatigue hydrique que l'échantillon a subi avant d'être sollicité mécaniquement. Ce type d'essai mécanique décrit des boucles d'hystérésis qui permettent d'en extraire les modules sécants, notés $E_{\sigma_n}^i$, où σ_n est la contrainte maximale atteinte durant la boucle n . Ainsi, le rapport $E_{\sigma_n}^i/E_0^i$ décrit la perte en module en fonction de l'avancée de l'essai, assimilable à un développement de l'endommagement macroscopique [74]. La Figure II.12b montre l'analyse de l'évolution de ce rapport en fonction de la contrainte appliquée. Les deux premiers points de la courbe ont pour ordonnée 1 : cela signifie qu'aucun endommagement macroscopique ne survient lorsque l'échantillon se situe dans son domaine élastique linéaire.

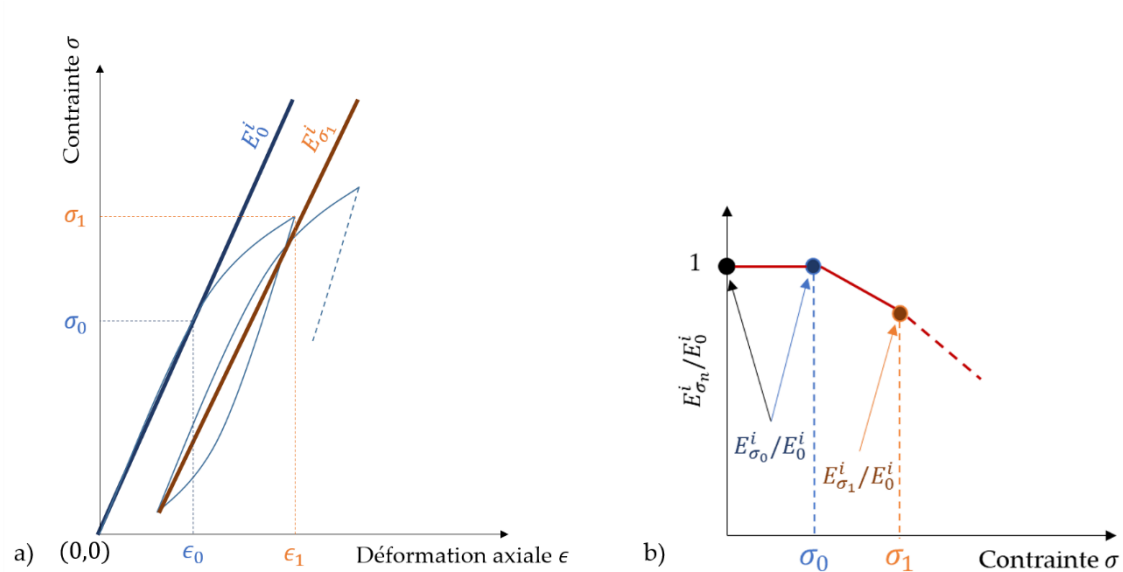


Figure II.12 : Essai de traction à chargements répétés progressifs réalisé après le $i^{\text{ème}}$ cycle de fatigue hydrique : a) courbe contrainte-déformation et b) module sécant normalisé par le module initial en fonction de la contrainte.

II.3.2 Corrélation d'images numériques (2D et 3D)

Deux techniques de mesure des déformations par corrélation d'images numériques ont été appliquées : la corrélation d'images numériques standard - en deux dimensions (DIC) - et la corrélation d'images numériques volumiques - en trois dimensions (DVC). La première technique est une méthode permettant de déterminer les champs de déformation sans contact (contrairement aux extensomètres par exemple) par la mesure du déplacement, dans le plan, d'un ensemble de fenêtres d'étude entre une image initiale et une image finale. Par dérivation du champ de déplacement, il est possible d'obtenir les champs de déformation dans le plan étudié [94]. La corrélation d'images numériques 2D est aujourd'hui largement répandue dans le domaine des matériaux composites. Généralement, la détermination du champ de déplacement nécessite l'application d'un mouchetis en surface d'un échantillon (Figure II.13). Deux images sont captées et comparées : la première correspond à l'état initial, sans déformation, et la seconde correspond à l'état final, déformé. La première image est divisée en fenêtres rectangulaires appelées fenêtres d'étude. Chaque fenêtre d'étude est un point de mesure caractérisé par une distribution de niveau de gris unique. Le principe du calcul par corrélation d'images numériques réside dans la recherche de la fenêtre d'étude initiale la plus similaire possible à la fenêtre d'étude déformée en utilisant une fonction de corrélation notée S [42], [63]. En corrélation d'images numériques 2D, le calcul consiste à maximiser le coefficient de corrélation noté R , c'est-à-dire à minimiser la fonction S [42] (équation II.11) :

$$S = 1 - R = 1 - \frac{\sum_{i,j=1}^N a(x_i, y_j) b(x'_i, y'_j)}{\left(\sum_{i,j=1}^N a(x_i, y_j)^2 \sum_{i,j=1}^N b(x'_i, y'_j)^2 \right)^{\frac{1}{2}}} \quad (\text{II.11})$$

avec a et b les fenêtres d'étude, respectivement, initiale et déformée, (x_i, y_j) les coordonnées de chaque pixel et N le nombre de pixels dans chaque fenêtre d'étude. La minimisation de la fonction S revient donc à rechercher le déplacement de chaque fenêtre a dans l'image déformée. La relation entre le point $P(x, y)$ et $P'(x', y')$, respectivement les pixels centraux des fenêtres a et b , est une déformation linéaire qui s'exprime selon les équations II.12 et II.13. Ainsi, le déplacement $d(u, v)$ est une fonction à six variables (équation II.14).

$$x' - x = u + \frac{\partial u}{\partial x} dx + \frac{\partial u}{\partial y} dy \quad (\text{II.12})$$

$$y' - y = v + \frac{\partial v}{\partial x} dx + \frac{\partial v}{\partial y} dy \quad (\text{II.13})$$

$$d(u, v) = \left(u, v, \frac{\partial u}{\partial x}, \frac{\partial u}{\partial y}, \frac{\partial v}{\partial x}, \frac{\partial v}{\partial y} \right) \quad (\text{II.14})$$

où (u, v) est le couple de coordonnées du vecteur déplacement associé au point P de la fenêtre d'étude a .

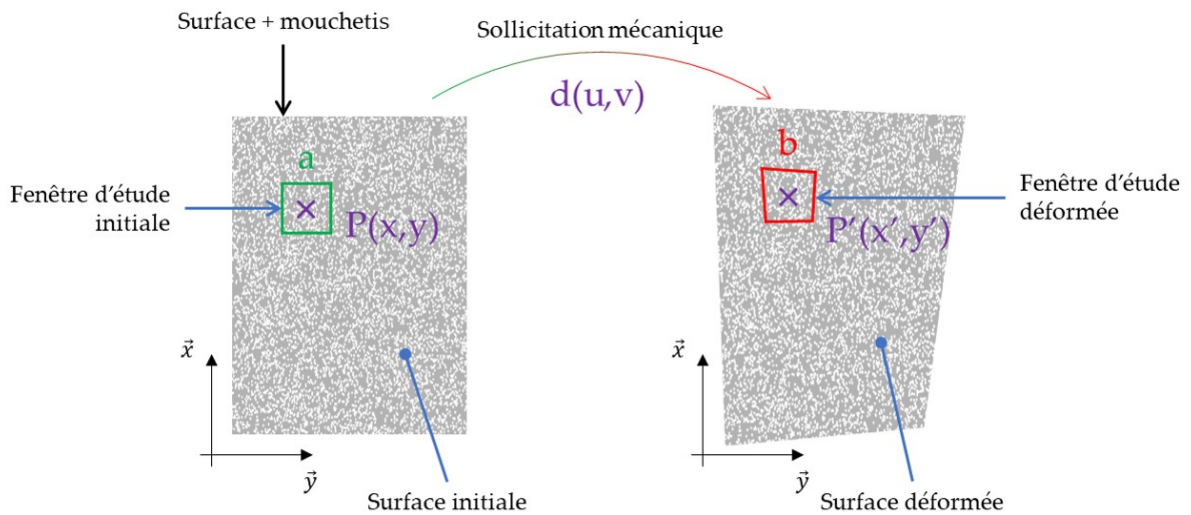


Figure II.13 : Principe de la corrélation d'images numériques en deux dimensions.

Le principe de la corrélation d'images numériques 3D est le même : il s'agit de suivre les volumes d'étude afin de déterminer les vecteurs déplacements entre le volume initial et le volume déformé [95], [96] (Figure II.14). Les équations précédemment développées peuvent être étendues en ajoutant une dimension. Ainsi, conformément aux équations II.11 à II.14, il

est possible d'exprimer le déplacement $d(u, v, w)$ décrivant le déplacement de la fenêtre d'étude a par l'équation II.15 :

$$d_{3D} = \left(u, v, w, \frac{\partial u}{\partial x}, \frac{\partial u}{\partial y}, \frac{\partial u}{\partial z}, \frac{\partial v}{\partial x}, \frac{\partial v}{\partial y}, \frac{\partial v}{\partial z}, \frac{\partial w}{\partial x}, \frac{\partial w}{\partial y}, \frac{\partial w}{\partial z} \right) \quad (\text{II.15})$$

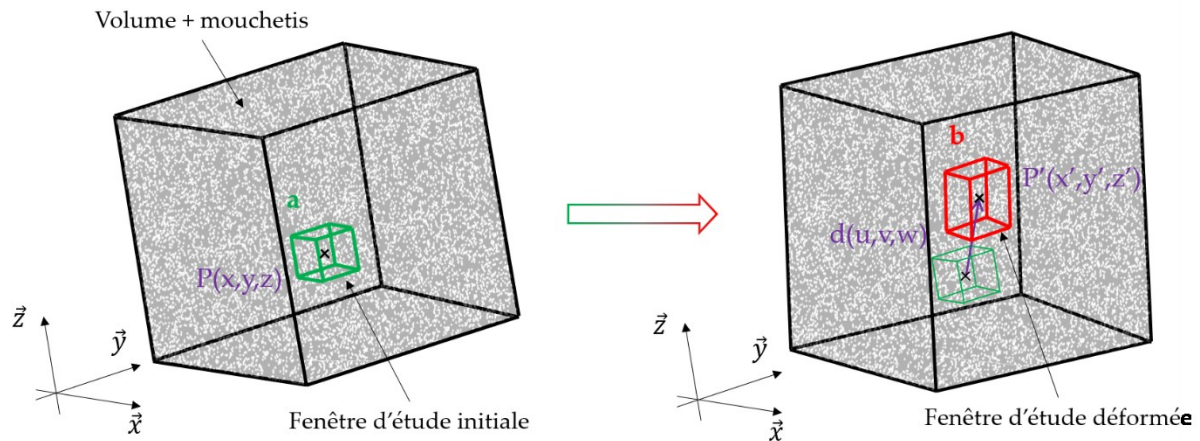


Figure II.14 : Principe de la corrélation d'images numériques en trois dimensions.

Afin de réaliser des mesures de déformation en trois dimensions, de même qu'en corrélation d'image 2D, il est nécessaire d'avoir un mouchetis distribué dans le volume étudié. Plusieurs méthodes ont été adoptées dans la littérature (voir section I.1.3.3.1).

Dans le cadre de ce travail de thèse, un essai de fragmentation a été réalisé sur une éprouvette monofilamentaire dont la matrice polymère a été chargée d'une poudre d'oxyde d'aluminium. Des images microtomographiques ont été utilisées pour mesurer les champs de déformation dans toutes les directions de l'espace pour des niveaux de chargements donnés. Les deux techniques, 2D et 3D, ont été utilisées pour mesurer les champs de déformation 2D et 3D. Les calculs en deux dimensions ont été effectués par le logiciel libre de droit *OpenDIC* [97]. Les fenêtres d'étude ont été définies par des carrés de 15 pixels de côté. Pour augmenter le nombre de points de mesure, les fenêtres d'étude ont été espacées de 9 pixels chacune, donnant ainsi un taux de recouvrement des fenêtres égal à 40%. Le temps de calcul était de l'ordre de la dizaine de seconde pour une corrélation d'images entre deux états de chargement. Concernant les calculs en trois dimensions, ils ont été effectués en utilisant le code *Matlab* développé par Yang *et al.* [98] dénommé *Augmented Lagrangian Digital Volume Correlation* (ALDVC). Les côtés de la fenêtre d'étude cubique sont de longueur 20 pixels. Le taux de recouvrement a été fixé à 50% (*i.e.* décalage des fenêtres d'étude de 10 pixels par point de mesure). Le temps de calcul, pour corréler deux volumes de $400 \times 1100 \times 400$ voxels (176 millions de voxels), était aux alentours de 12 heures en utilisant les machines de calcul du laboratoire. Les champs de déformation 2D et 3D ainsi obtenus seront présentés en partie III.4.

II.4 Méthodes d'analyse des endommagements

II.4.1 Suivi *in-situ* par émission acoustique

II.4.1.1 Principe de l'émission acoustique

Comme expliqué en section II.3.1, les éprouvettes de composites tissés, testées par essai de traction à chargements répétés progressifs, ont été instrumentées par un système d'acquisition d'émission acoustique (Figure II.11). La détection des événements acoustiques en cours de sollicitation mécanique est beaucoup utilisée pour l'analyse des endommagements au sein des matériaux composites. Cette méthode permet un suivi *in-situ* de l'endommagement, caractérisé notamment par la cinétique, la quantité, l'énergie et la localisation de ces endommagements [13], [68], [75], [99].

Le principe de détection des endommagements par émission acoustique repose sur l'enregistrement de l'onde sonore élastique associée grâce à deux capteurs piézoélectriques. Ce signal est préalablement amplifié afin d'être post-traité (Figure II.15). Le signal émis est caractéristique du type d'endommagement apparaissant dans le matériau. Cinq grandeurs physiques sont à considérer afin d'associer le signal émis à un type d'endommagement au sein des composites : l'amplitude maximale, le temps de montée (*rise time*), la durée (*duration*), le nombre de coups (*number of counts*) et l'énergie absolue [76], [99]–[101].

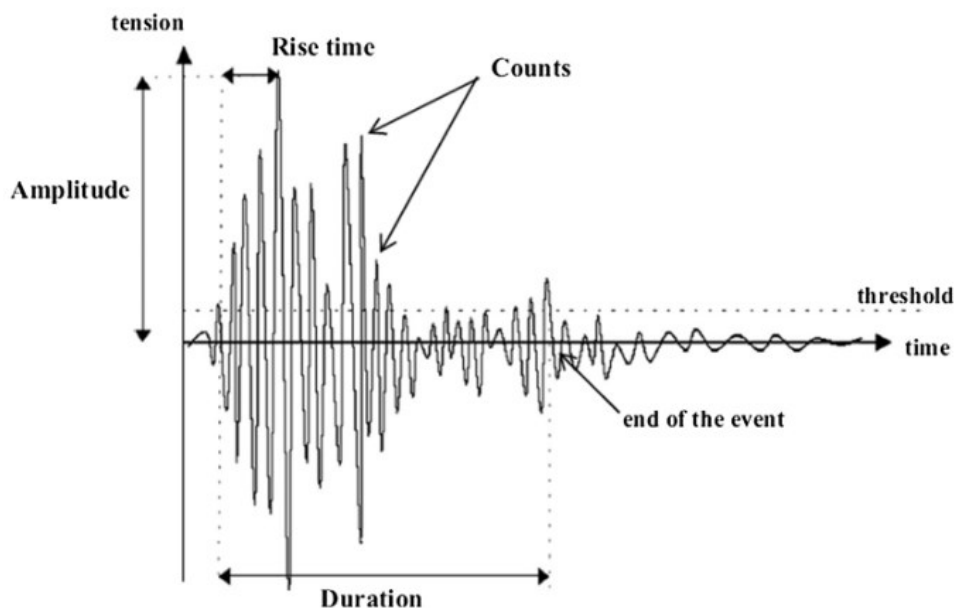


Figure II.15 : Signal d'émission acoustique amplifié et caractéristiques associées [102].

II.4.1.2 Mise en place d'un essai mécanique avec suivi in-situ par émission acoustique

Le système d'acquisition d'émissions acoustiques utilisé dans la thèse est un système PCI-2 de la société *Mistras Group*. Deux capteurs piézoélectriques du type *Micro-80* d'un diamètre de 10 mm sont fixés à l'aide de Patafix® et de pinces en surface d'un échantillon, alignés sur la direction de traction (Figure II.11b). Les capteurs ont une fréquence de résonance de 300 Hz et sont reliés à des préamplificateurs de 40 dB. Un seuil de détection en amplitude a été déterminé afin de réduire la captation de bruits parasites : il a été fixé à 33 dB pour l'ensemble des matériaux composites tissés. Une fois les capteurs positionnés sur l'éprouvette montée sur la machine de traction, il est nécessaire d'indiquer au système d'acquisition le positionnement des capteurs ainsi que la vitesse des ondes acoustiques au sein du matériau testé. Une première étape consiste à réaliser un essai AST (*Auto Sensor Test*) : les capteurs échangent un certain nombre de signaux. Le système d'acquisition mesure alors le temps que les ondes ont mis pour parcourir la distance entre les capteurs. Il est ainsi possible de déterminer la vitesse des ondes pour un matériau donné, dans un état donné, qu'il suffit de renseigner dans le système d'acquisition. Une fois cette étape réalisée, une étape de vérification de la localisation des ondes est à effectuer. Cette étape consiste à casser une mine de criterium à proximité de chaque capteur. La visualisation en direct du positionnement des événements acoustiques permet de valider le réglage des distances et de la vitesse de l'onde au sein du matériau. Sur la base des travaux de Bonnafous [10], les paramètres à régler sur les données d'acquisition sont donnés dans le Tableau II.5. Le PDT permet la détermination du maximum du signal émis. Le HDT définit quant à lui la durée d'un écho acoustique. Enfin, le HLT correspond au temps de réarmement et se déclenche à la suite du HDT. Il permet d'éviter l'acquisition d'éventuels échos [10].

Tableau II.5 : Paramètres d'acquisition des signaux acoustiques.

Paramètre	Définition	Valeur	Unité
PDT	Peak Definition Time	200	μs
HDT	Hit Definition Time	1000	μs
HLT	Hit Lockout Time	800	μs

II.4.1.3 Traitement des données d'émission acoustique

Les données d'émission acoustique issues des essais mécaniques ont été traitées en s'intéressant d'une part aux amplitudes et aux énergies des événements acoustiques, d'autre part en classant les événements acoustiques par type d'endommagement tel que cela a été fait dans la thèse de Romain Barbière [13]. La procédure développée dans le cadre de sa thèse a

été directement appliquée ici. Le logiciel *AEwin for PCI2 E5.40* permet de visualiser et de paramétrer l'ensemble de l'acquisition des données d'émission acoustique.

Le post-traitement des données d'émission acoustique a été effectué avec le logiciel *Orange Data Mining*, qui est libre de droit et qui utilise le langage *Python*. Ce logiciel est adapté au traitement de données volumineuses. La Figure II.16 montre l'arborescence des étapes de calculs permettant le tri des données issues d'un essai de traction à chargements répétés progressifs sur une éprouvette de composite tissé.

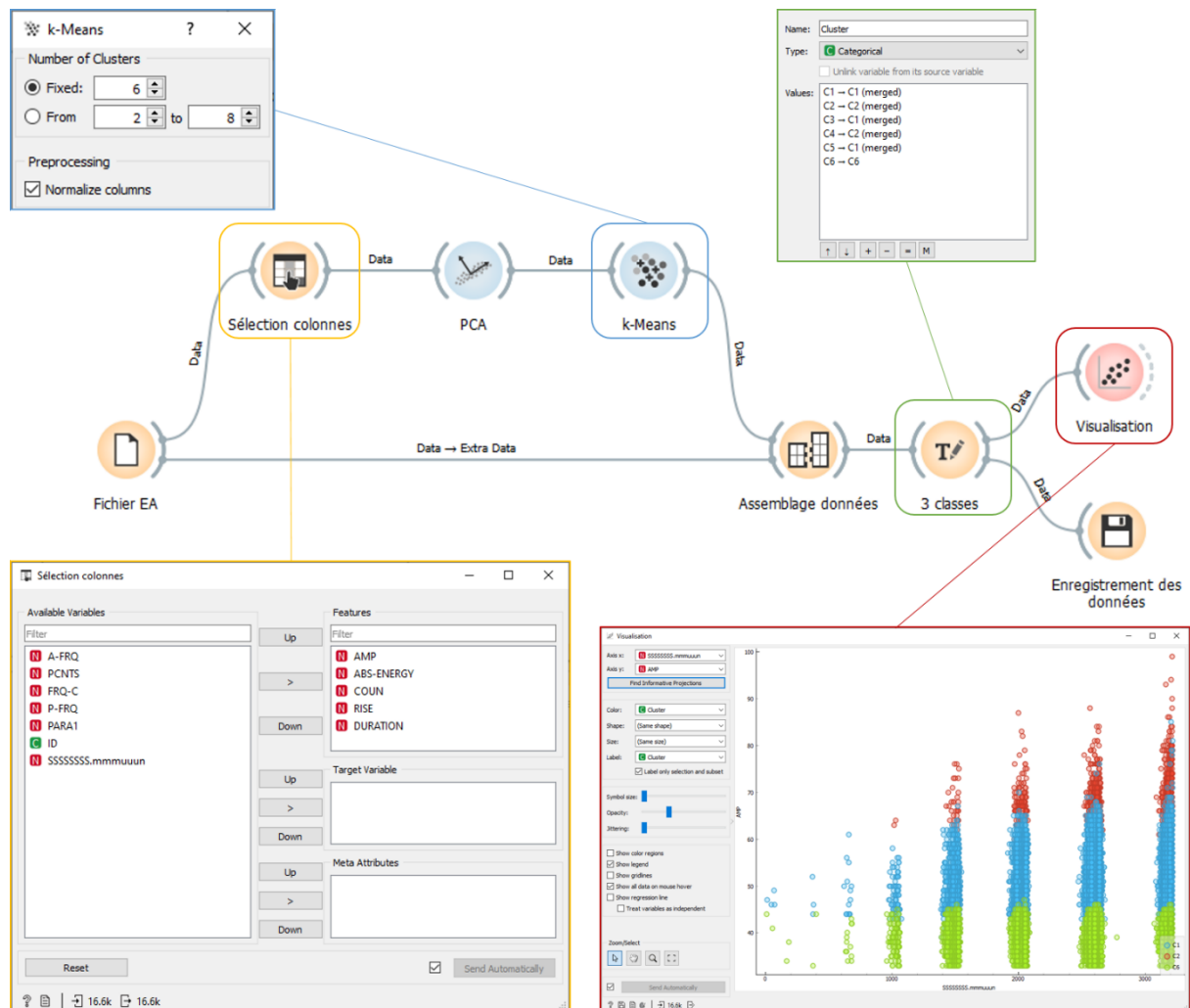


Figure II.16 : Post-traitement des émissions acoustiques via Orange Data Mining suite à un essai de traction à chargements répétés progressifs sur une éprouvette de composite tissé.

Les données d'entrée sont celles enregistrées par le système d'acquisition qui contiennent pour chaque évènement acoustique ses descripteurs associés. Les données brutes sont extraites d'*AEwin* et sauvegardées sous la forme d'un tableur (« Fichier EA » dans la Figure II.16). Les cinq descripteurs pertinents sont sélectionnés (« Sélection colonnes »). Ensuite, une analyse en composantes principales (APC ou *PCA* en anglais) sur les données est réalisée. Il s'agit d'une technique multivariable qui permet d'analyser un jeu de données décrit par plusieurs

variables interdépendantes [103]. L'étape suivante consiste à appliquer sur les nouvelles données d'entrée l'algorithme non supervisé des k -moyennes (k -Means). L'objectif de cette opération est de trouver des similitudes dans les données d'entrées en les regroupant en k classes, tout en minimisant la distance euclidienne entre chaque groupe de données. La Figure II.17 offre une visualisation des différentes étapes de l'algorithme des k -moyennes dans le cas où k égal à trois. Cette simulation a été réalisée à partir d'un logiciel open source [104]. Le but ici sera de créer 3 classes par deux façons différentes : soit en utilisant l'algorithme des k -moyennes en fixant le nombre de classes à 3, soit en fusionnant les k classes issues de l'algorithme des k -moyennes par une étape supplémentaire (« 3 classes » dans la Figure II.16). Ainsi, dans la Figure II.16, les trois classes représentent des endommagements liés à des fissurations matricielles (en vert), des décohésions à l'interface fil/matrice (en bleu) et des ruptures de fibres (en rouge).

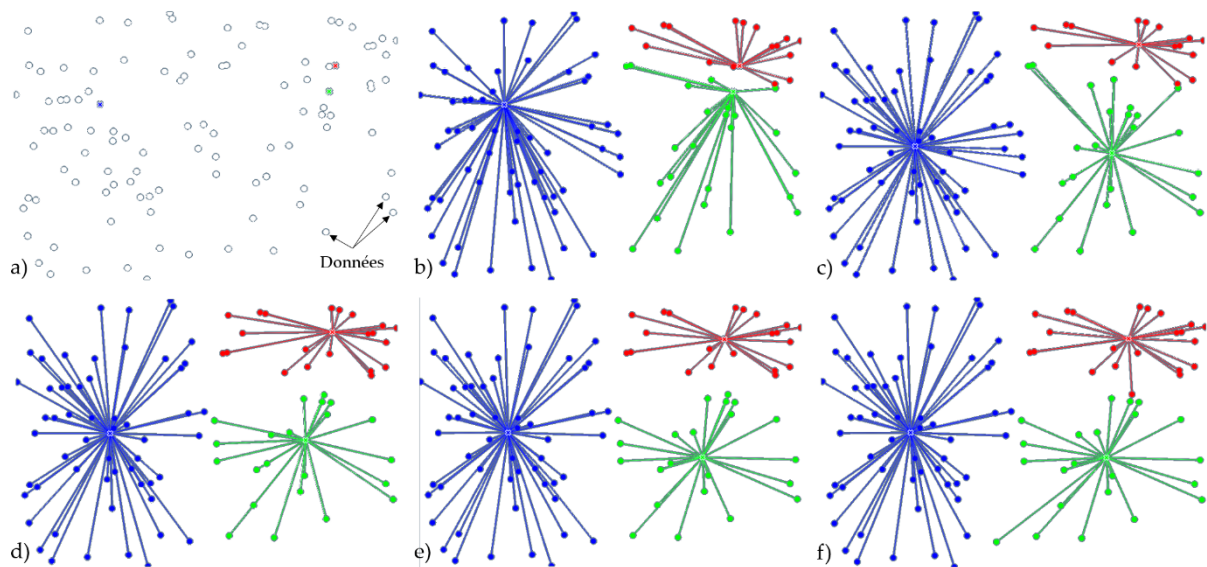


Figure II.17 : Visualisation schématique de l'algorithme des k -moyennes : a) données d'entrées et initialisation des centroides des trois classes recherchées, b) assignation des données classées par centroide, c) mise à jour des nouveaux centroides, d) assignation des nouvelles données classées par les nouveaux centroides, e) et f) dernière itération permettant la stabilité du positionnement des centroides (visualisation créée en utilisant [104]).

II.4.2 Microscopies optique et électronique à balayage

Les observations en microscopie optique ont été réalisées à l'aide d'une binoculaire de la marque *LEICA Microsystems*. Cette binoculaire a été utilisée pour réaliser les mesures de diamètres de fils et de longueurs des fragments dans le cadre des essais de fragmentation. Les faciès de rupture de ce type d'éprouvette ont également été observés par cette binoculaire. Certaines observations ont été réalisées avec un polariscope circulaire permettant d'analyser les répartitions des contraintes locales autour du fil de chanvre des éprouvettes

monofilamentaires. La Figure II.18 montre un exemple de franges photoélastiques lorsqu'un fragment est présent dans une éprouvette MChGP. La résine Greenpoxy a la caractéristique d'être biréfringente, c'est-à-dire qu'elle possède un indice de réfraction de la lumière dépendant de son état de contrainte interne, d'où l'apparition de ces franges.

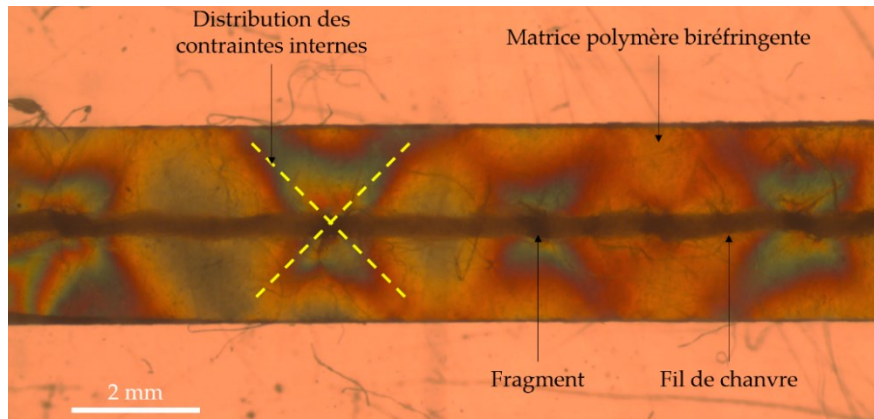


Figure II.18 : Exemple d'observation post-rupture d'une éprouvette monofilamentaire chanvre/Greenpoxy fragmentée sous lumière polarisée.

Des observations ont également été réalisées à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB). Le MEB utilisé est le modèle VEGA3 de la marque TESCAN. En fonction des cas, la tension d'accélération des électrons utilisée se situe entre 5 et 10 kV. Les faciès de rupture des composites tissés ainsi que ceux des éprouvettes monofilamentaires ont été analysés grâce à cette technique d'observation. Afin de pouvoir observer les faciès de rupture, il est nécessaire d'avoir un matériau conducteur. Pour ce faire, les échantillons *post-mortem* à observer ont tous été métallisés. Le métalliseur utilisé, de la société Cressington, permet de réaliser, dans une enceinte sous vide, un dépôt d'une fine couche d'un alliage or-palladium. La Figure II.19 montre l'exemple du montage pour une observation sous microscope électronique à balayage de quatre échantillons de composites tissés à renfort de chanvre.

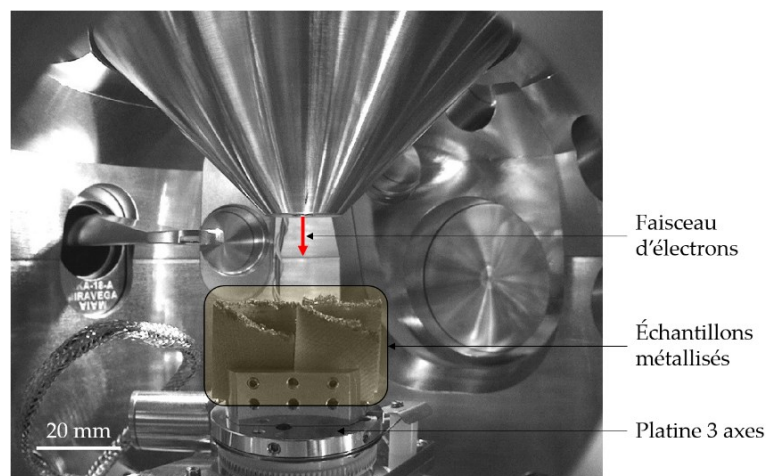


Figure II.19 : Vue de quatre échantillons de composites tissés post-mortem dans l'enceinte sous vide du MEB.

II.4.3 Microtomographie à rayons X

II.4.3.1 Appareil utilisé

Un microtomographe *UltraTom CT* de la société *RX Solutions* (France) a été utilisé afin d'obtenir des images volumiques des échantillons, avant et après fatigue hydrique, avant et après sollicitation mécanique. Le tube à rayons X, de la marque *Hamamatsu*, fonctionne sur une gamme d'ampérage et de voltage de, respectivement, 0-500 μA et 20-150 kV. La puissance maximale de la source de rayons X est donc de 75 W. Le principe d'acquisition d'images est décrit en Figure II.20. Une source de rayons X (de longueur d'onde située entre 0,03 et 10 nm) émet un faisceau en direction d'un détecteur. Entre ces deux éléments est mis en place l'échantillon à scanner, sur une platine permettant la rotation de celui-ci autour de l'axe vertical \vec{x} (Figure II.20). Les rayons X sont plus ou moins absorbés par l'échantillon en fonction de la densité des milieux traversés. Pendant le scan, l'échantillon tourne autour de l'axe de rotation. À chaque pas de rotation, une radiographie est réalisée, jusqu'à effectuer un tour complet. Il est également possible de réaliser plusieurs rotations complètes de l'échantillon, à des altitudes différentes, permettant de scanner une zone plus longue. Une étape de reconstruction numérique de ces images est ensuite réalisée par l'algorithme du faisceau conique de Felkamp. Cela permet en particulier d'obtenir une série d'image 2D donnant une représentation volumique de l'échantillon scanné. Pour obtenir une résolution spatiale la plus fine possible, il est nécessaire de réduire au maximum la distance source-échantillon. La dimension de l'échantillon, en rotation sur la platine, est donc un paramètre influant directement sur la résolution spatiale des images. Chaque image 2D obtenue, appelée « slice », représente une section du matériau dans un plan XY, YZ ou XZ. L'ensemble des slices dans un plan donné constitue un « stack » (Figure II.20).

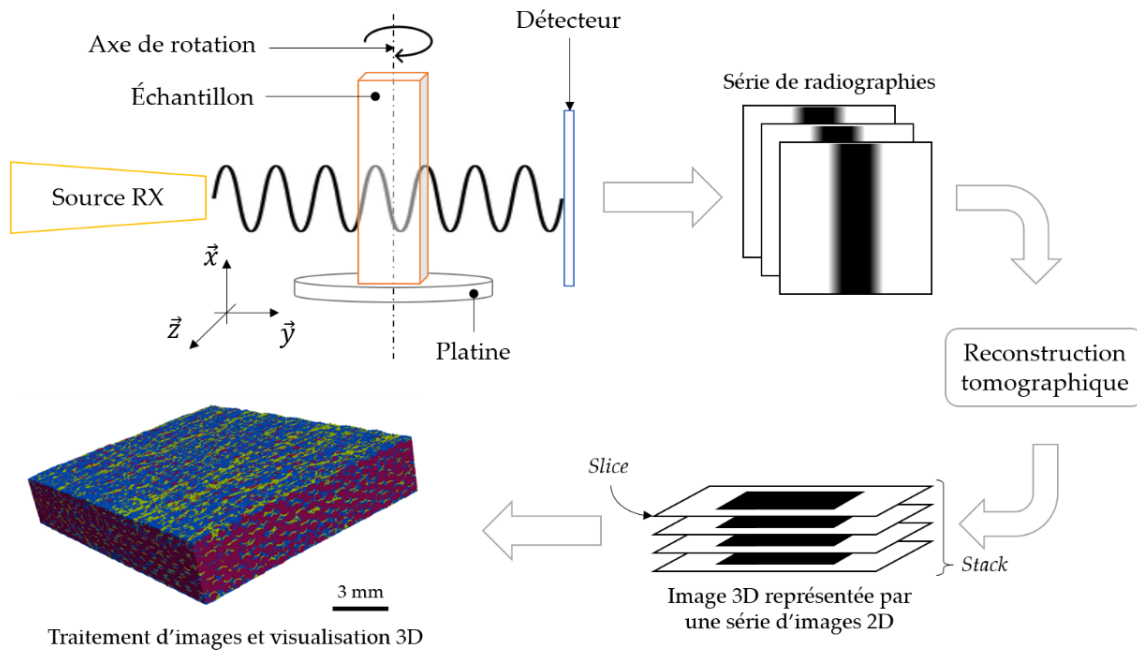


Figure II.20 : Schéma de principe de l'acquisition microtomographique et exemple d'un traitement d'images microtomographiques d'une éprouvette de composite tissé à renfort de chanvre.

Dans le cadre de la thèse, plusieurs types d'échantillon ont été scannés : des éprouvettes monofilamentaires et des composites tissés. Les paramètres d'acquisition microtomographique ont alors été adaptés à chaque cas. Ces paramètres seront explicités dans les parties résultats concernées.

II.4.3.2 Traitement des images

L'analyse des mécanismes d'endommagement passe par la quantification des dommages induits par le vieillissement hydrique et la sollicitation mécanique. Deux méthodes ont été développées.

La première méthode consiste à isoler les endommagements par le module *Auto Local Threshold* du logiciel libre de droit *ImageJ* [105]. La procédure qui suit décrit un exemple de post-traitement d'images microtomographiques reconstruites d'une éprouvette de composite tissé chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ stockée à l'ambiante après essai mécanique. La résolution de ces images est de 15 microns par voxel. Le point de départ est l'ensemble des images microtomographiques du stack XY. La Figure II.21 montre un exemple des endommagements à isoler sur une slice XY non modifiée dans une zone définie par le rectangle rouge. Cette zone a été définie de sorte que, pour chaque traitement d'image de ce type, le rectangle ait toujours la même hauteur afin d'analyser les endommagements toujours à la même distance de la zone de rupture. Sur la Figure II.21, on observe, du plus clair au plus sombre, un tissu de chanvre,

de la matrice Elium, des endommagements et l'extérieur de l'éprouvette. Un rognage de l'image est donc réalisé suivant le rectangle rouge de la Figure II.21. Les premières slices de chaque stack d'images sont situées à l'extérieur de l'éprouvette. Ainsi, il est nécessaire de retirer les slices avant et arrière du stack : opération « substack » dans *ImageJ*. La Figure II.22 montre les zones hors éprouvette à ne pas considérer dans la segmentation (Figure II.22a) et la première slice du stack analysé (Figure II.22b).

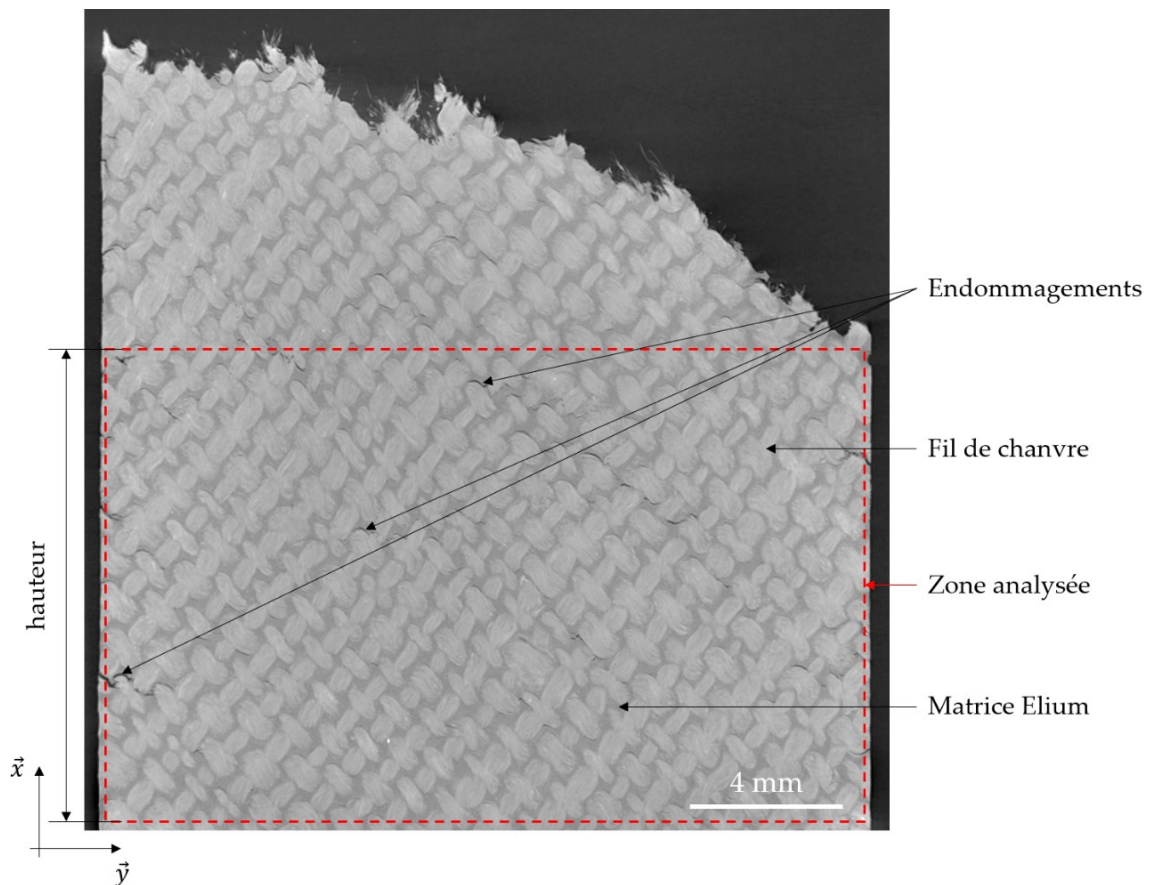


Figure II.21 : Image microtomographique d'une éprouvette chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ stockée à l'ambiante après essai mécanique et zone à analyser (rectangle rouge).

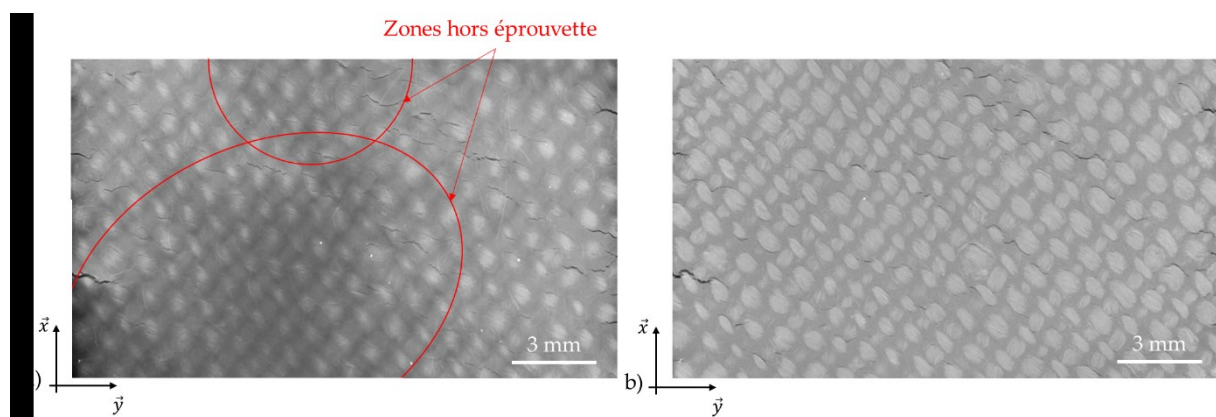


Figure II.22 : a) Slice à retirer du substack et b) première slice du stack analysé.

Une fois le substack défini, un ajustement de la luminosité et du contraste est nécessaire. La Figure II.23 montre les différences entre une slice originale et une slice dont la luminosité et le contraste ont été modifiés.

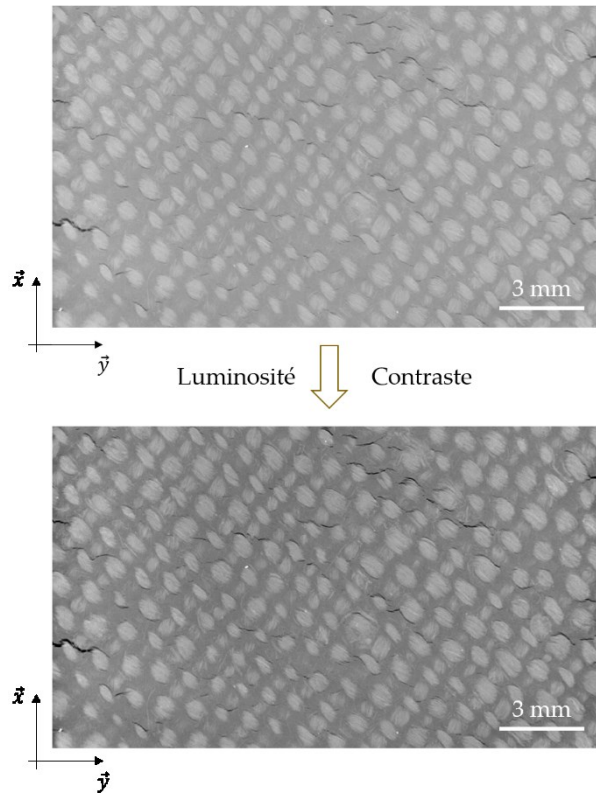


Figure II.23 : Modification de la luminosité et du contraste avant segmentation.

Le module *Auto Local Threshold* propose plusieurs algorithmes de segmentation. Barbière [13] utilise l'algorithme développé en 1998 par Sauvola [106]. Cet algorithme est adapté pour segmenter des images comportant de forts gradients de contraste comme c'est le cas pour distinguer les endommagements de la matrice ou du renfort. La Figure II.24 montre le résultat de la segmentation d'une slice par l'algorithme de Sauvola : les endommagements semblent être correctement isolés. Pour obtenir un rendu volumique, l'ensemble des images segmentées a été post-traité avec le logiciel, libre de droit, *Paraview*. La Figure II.25 montre le résultat de la segmentation de l'exemple présenté ici, avec en transparent la matrice et les renforts du composite et en bleu les endommagements. Une animation 3D est accessible via le lien [\[h1\]](#) ou via le QR code en bas à droite de l'image. On peut d'ores et déjà remarquer que, dans cet exemple d'une éprouvette de chanvre/Elium renforcé à $\pm 45^\circ$, les endommagements sont distribués selon des lignes à $\pm 45^\circ$.

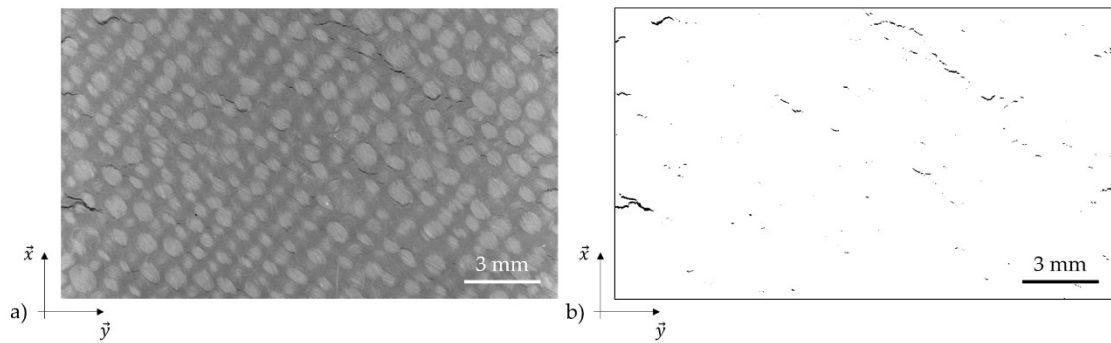


Figure II.24 : a) Image à analyser et b) image segmentée par l'algorithme de Sauvola.

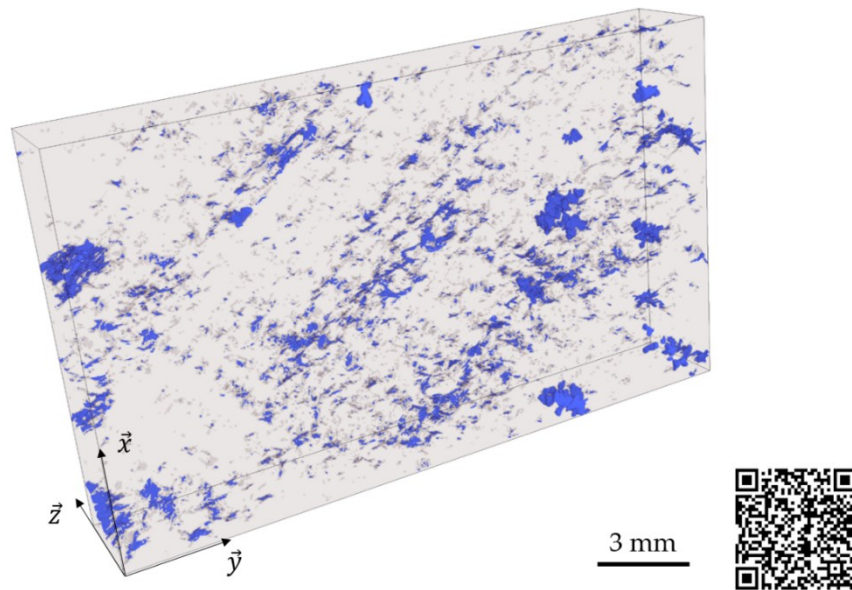


Figure II.25 : Représentation 3D des endommagements (bleu) au sein de la matrice (transparent) du composite chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ stocké à l'ambiante après essai mécanique.

La seconde procédure utilise un plugin de segmentation dans *ImageJ* basé sur l'intelligence artificielle qui se nomme *Trainable Weka Segmentation 3D* [107]. Ce plugin combine des algorithmes d'apprentissage automatique, des outils d'analyse de données et de visualisation 2D. La démarche consiste à segmenter les phases d'un matériau à partir d'un stack d'images. L'apprentissage de l'algorithme se fait grâce aux données entrées par l'utilisateur, qui désigne quelle phase est associée à chaque zone de l'image. L'algorithme compare les données d'entrée avec chaque pixel du stack d'images afin d'attribuer chaque phase à la plus probable des zones de l'image. Les comparaisons et les attributions se font grâce à quatre critères sur les pixels sélectionnés par l'utilisateur : moyenne, variance, médiane, structure. Les trois premiers critères sont basés sur des opérations mathématiques sur l'ensemble des pixels attribués par l'utilisateur et le critère « structure » permet à l'algorithme d'identifier les formes des objets sélectionnés. Dans le cadre de la thèse, jusqu'à 5 phases seront segmentées : le renfort, la matrice, les endommagements, les porosités et l'extérieur de l'éprouvette. L'exemple qui suit

traite du même matériau que celui de la segmentation précédente : chanvre/Elium $\pm 45^\circ$, stocké à l'ambiante, après essai mécanique. Le stack de départ choisi ici est le stack YZ, dans lequel les endommagements ainsi que les changements de phases (fil et matrice) sont plus facilement observables à l'œil. Dans un premier temps, les images sont modifiées afin d'accentuer les contrastes au maximum et ainsi faciliter la segmentation par l'algorithme (Figure II.26). La luminosité et le contraste ont été modifiés et une opération du type « médian » a été effectuée sur l'ensemble des pixels des images du stack complet, dans les trois directions de l'espace (Médian 3D). Les zooms de la Figure II.26 montrent l'intérêt de cette dernière opération : l'image est légèrement lissée, c'est-à-dire que les niveaux de gris sont plus homogènes au sein de chaque phase à segmenter.

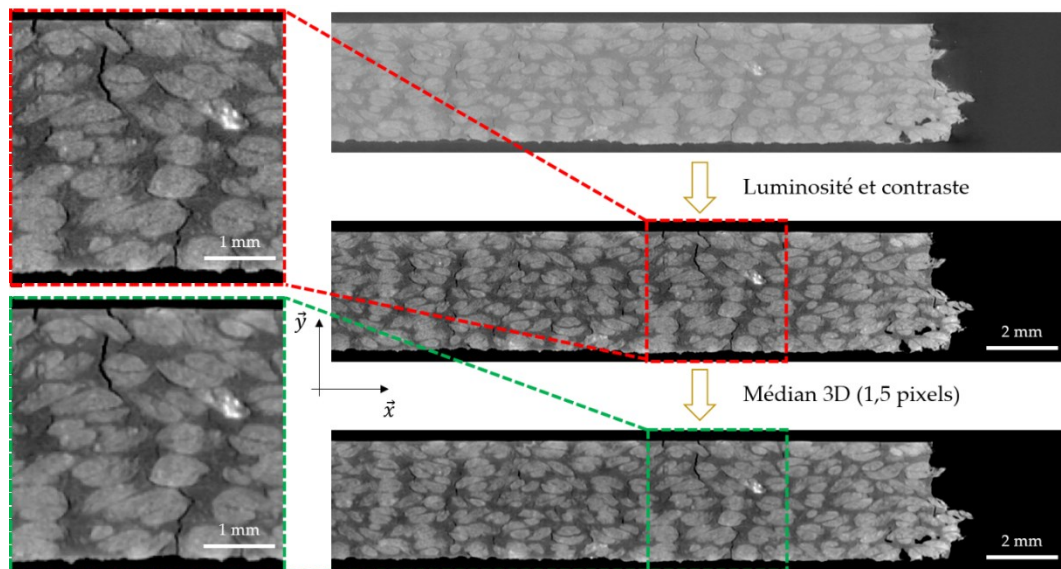


Figure II.26 : Modification des images avant segmentation par la méthode Trainable Weka Segmentation 3D. Zooms montrant l'effet de l'opération « Médian 3D ».

Une fois le stack d'images prêt, le plugin *Trainable Weka Segmentation 3D* peut être exécuté. La Figure II.27 montre l'interface du plugin. Les encadrés jaunes représentent les phases à segmenter : matrice, renfort, endommagement et extérieur dans cet exemple. L'encadré vert concerne l'entraînement de l'algorithme (Figure II.27). Une fois la segmentation réalisée, si celle-ci est satisfaisante, il est possible de sauvegarder l'entraînement effectué pour qu'il soit utilisable pour d'autres stacks d'images. Ensuite, en utilisant les outils de traçage d'*ImageJ*, les phases connues par l'utilisateur sont sélectionnées et ajoutées à chacune des classes définies. Lorsque suffisamment d'éléments sont sélectionnés, le bouton « Train classifier » lance les calculs. Du fait de la grande taille des images tomographiques (1,7 milliard de voxels pour une éprouvette de composite tissé par exemple), les segmentations réalisées par cette méthode ont toutes été réalisées en travaillant avec le calculateur du *Méso-centre de calcul SPIN* de Poitou Charentes.

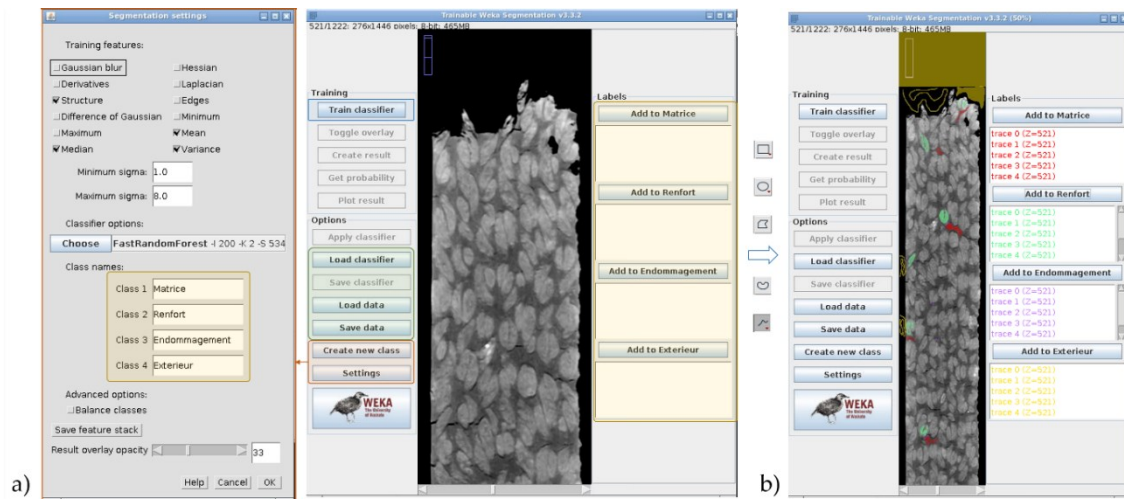


Figure II.27 : a) Interface du plugin Trainable Weka Segmentation 3D et b) définition des phases à classer.

La Figure II.28 montre une slice de l'échantillon à segmenter (Figure II.28a), le résultat de la segmentation issue de l'interface d'*ImageJ* (Figure II.28b) et ce résultat post-traité par *Paraview* (Figure II.28c), avec une version animée via le lien [\[h2\]](#) et le QR code en bas à droite de la Figure II.28.

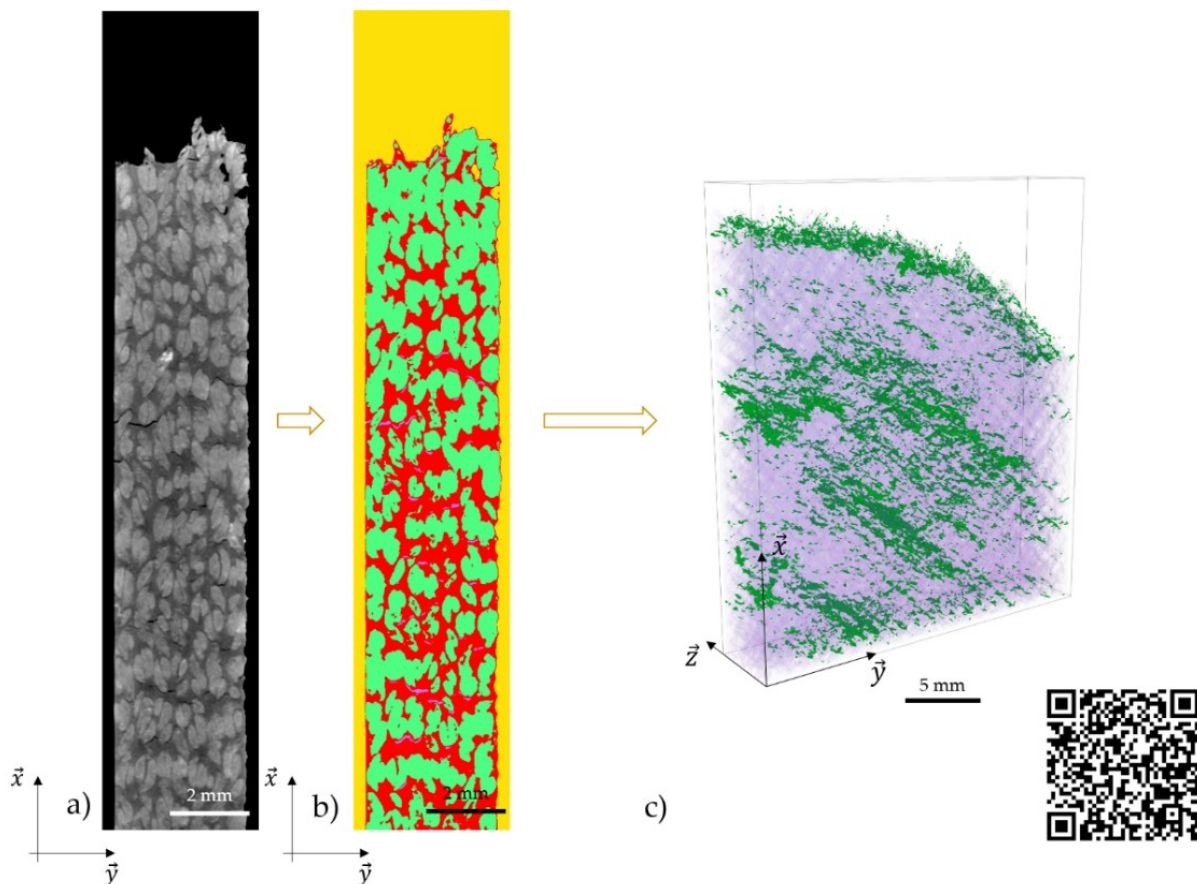


Figure II.28 : a) Image issue du stack à segmenter ; résultat de la segmentation par le plugin Trainable Weka Segmentation 3D sur b) une slice et c) le volume tomographié complet.

Afin de quantifier les endommagements, suite aux deux méthodes de segmentation précédemment présentées, un code *Matlab* a été spécifiquement développé. Il permet, quel que soit le nombre de phases segmentées, de calculer le taux volumique de chaque phase, donnant ainsi notamment accès au taux d'endommagement. Il faut noter que seuls les endommagements d'une taille supérieure à la résolution du scan (15 microns par voxel ici) sont observables. Dans le cas présenté en Figures II.25 et II.28, les taux d'endommagement calculés valent 1,04% pour la méthode dite « Sauvola » et 1,02% pour la méthode « *Trainable Weka Segmentation 3D* ». Enfin, le Tableau II.6 présente les avantages et les inconvénients dans l'utilisation des deux méthodes présentées. Malgré des temps de calcul beaucoup plus longs, la méthode *Trainable Weka Segmentation 3D* reste la plus efficace lorsqu'une visualisation globale en trois dimensions est souhaitée. Pour calculer les taux d'endommagement de l'ensemble des matériaux de la thèse, la méthode Sauvola sera privilégiée pour sa rapidité d'exécution.

Tableau II.6 : Avantages et inconvénients des méthodes Sauvola et Trainable Weka Segmentation 3D pour la segmentation des matériaux composites.

Sauvola		Trainable Weka Segmentation 3D	
Avantages	Inconvénients	Avantages	Inconvénients
Les temps de calcul sont courts (1 à 5 minutes).	Seulement 2 phases peuvent être segmentées. La zone étudiée ne peut pas contenir le faciès de rupture.	Possibilité de segmenter n phases. La zone étudiée peut contenir le faciès de rupture.	Les temps de calcul sont longs (environ 6 heures). Nécessite l'utilisation d'un supercalculateur.

II.4.3.3 Essai de traction *in-situ*

Un essai de traction *in-situ* dans le microtomographe a été réalisé à l'aide d'une machine de traction développée au laboratoire, nommée *MUTTOM*. Cette machine de traction *in-situ* permet de réaliser des acquisitions microtomographiques sur des matériaux sous charge, à température et humidité contrôlées [108]. La Figure II.29 montre une vue en trois dimensions du modèle numérique réalisé sous le logiciel *CATIA* de la machine de traction *in-situ*. L'axe de traction, noté \vec{x} sur la Figure II.29, est confondu avec l'axe de rotation de la platine rotative du microtomographe (Figure II.20). Une cellule de charge est montée sur la partie supérieure de la machine de traction ; elle a une capacité de 25 kN. La cellule de charge est liée au mors supérieur, qui est le mors fixe. Quant au mors inférieur mobile, il est assemblé à un actionneur linéaire qui permet son mouvement dans la direction \vec{x} . Afin de transmettre les efforts à une éprouvette montée dans les mors de la machine de traction, un tube cylindrique creux en PEEK relie les parties supérieure et inférieure entre elles. L'action de

translation du mors inférieur dans le sens de la flèche de la Figure II.29 entraîne la sollicitation en traction de l'éprouvette montée dans les mors de la machine, via un rattrapage des efforts au sein du tube en PEEK. La Figure II.30 montre l'installation d'une éprouvette de composite tissé à renfort de chanvre dans la machine de traction *MUTTOM*, sans la cellule de charge ni le tube en PEEK. Hors du tomographe, un système permet l'acquisition des données issues de l'essai mécanique en cours.

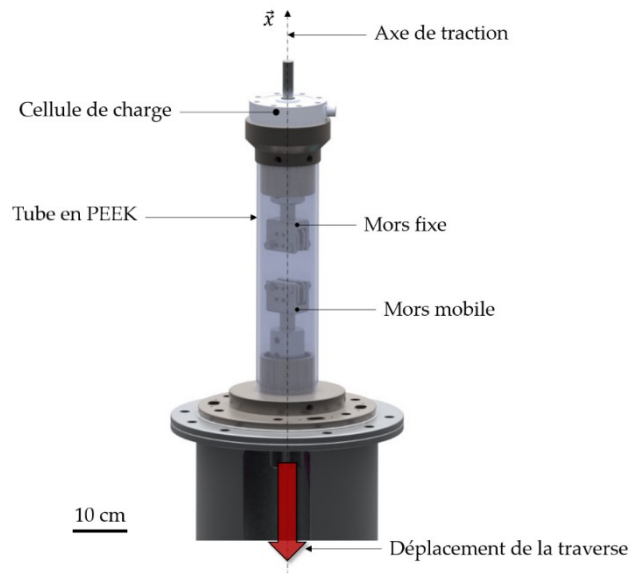


Figure II.29 : Vue en trois dimensions du modèle CATIA de la machine de traction *MUTTOM*.



Figure II.30 : Montage d'une éprouvette de composite tissé dans la machine de traction *MUTTOM* installée dans le microtomographe.

Bilan sur les matériaux et les techniques employées

Dans ce chapitre, les matériaux à caractériser ont été présentés. Différents types d'éprouvettes permettront d'étudier les fils de chanvre, les matrices pures, l'interface fibre/matrice et les composites tissés de manière indépendante. La température de transition vitreuse des trois matrices a été mesurée par calorimétrie différentielle après l'application de traitements thermiques adaptés. Les composites tissés fabriqués au laboratoire ont été réalisés dans le but qu'ils aient un taux volumique de fibres du même ordre de grandeur, facilitant les comparaisons entre les matériaux. Les caractérisations mécaniques des constituants doivent permettre d'expliquer les évolutions des propriétés mécaniques et des mécanismes d'endommagement des composites tissés soumis à de la fatigue hydrique.

Les équations de Fick ont été adaptées à la fatigue hydrique dans le but de suivre l'évolution des propriétés à l'absorption (cinétique et absorption à saturation) des matériaux étudiés en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique. Un suivi dimensionnel permettra également de déterminer les variations d'épaisseur des échantillons de composites tissés tout au long de la fatigue hydrique.

Différents moyens de mesures expérimentales ont été déployés. Les éprouvettes de polymères purs et de composites tissés ont été instrumentées d'un extensomètre à couteaux. Les composites tissés ont également été équipés d'un extensomètre bidimensionnel, donnant accès à la déformation transverse, et d'un système d'acquisition d'émission acoustique. Concernant l'analyse de l'interface fil/matrice, un essai de fragmentation a été couplé à des observations microtomographiques permettant la mise en œuvre de mesures de champs de déformation 2D et 3D par corrélation d'images numériques. Enfin, un essai de traction *in-situ* au sein du microtomographe a été réalisé sur une éprouvette de composite à renfort de chanvre dans le but d'observer le développement des endommagements sur un échantillon chargé.

Différents moyens d'observation ont également été utilisés. L'ensemble des composites tissés a été observé par microtomographie avant et après vieillissement hydrique et essai mécanique. Les faciès de rupture des éprouvettes monofilamentaires et des composites tissés ont été analysés par microscopie électronique à balayage. La mesure des endommagements par différents moyens ainsi que les observations aux différentes échelles doivent permettre une compréhension fine des mécanismes d'endommagement qui ont lieu au sein des composites tissés, vieillis par fatigue hydrique.

III. Caractérisation mécanique multi-échelle des matériaux non vieillis

Ce chapitre est consacré à la détermination des propriétés mécaniques des constituants (fil, résine, interface) et des composites tissés dans leur état post-fabrication, suite à un stockage à température et humidité ambiantes. Les résultats issus de ce chapitre serviront de base permettant ensuite d'étudier l'influence des différents vieillissements hydriques auxquels seront soumis l'ensemble des constituants ainsi que les composites tissés à renfort de chanvre et de verre. Une étude spécifique traitera de la caractérisation de l'interface fil/matrice dans un composite monofilamentaire à renfort de chanvre par corrélation d'images numériques en trois dimensions.

III.1 Fil de chanvre

Les résultats des essais de traction sur fils seuls stockés à température et humidité ambiantes ont deux principaux objectifs : connaître les propriétés mécaniques des fils non vieillis et utiliser la contrainte à rupture des fils pour déterminer la qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice dans le cadre des essais de fragmentation, qui seront présentés en partie III.4.

III.1.1 Préparation des essais de traction sur fils

Afin de déterminer une contrainte, il est nécessaire de mesurer un diamètre moyen pour chaque fil. Les mesures de diamètre ont été réalisées à l'aide d'une binoculaire *LEICA Microsystems*. La Figure III.1 montre un exemple de mesures de diamètre de fil. La source lumineuse se situe sous le fil, ainsi l'ombre projetée est utilisée pour mesurer les diamètres des fils. Pour chaque fil, quatre à cinq mesures de diamètre ont été effectuées.

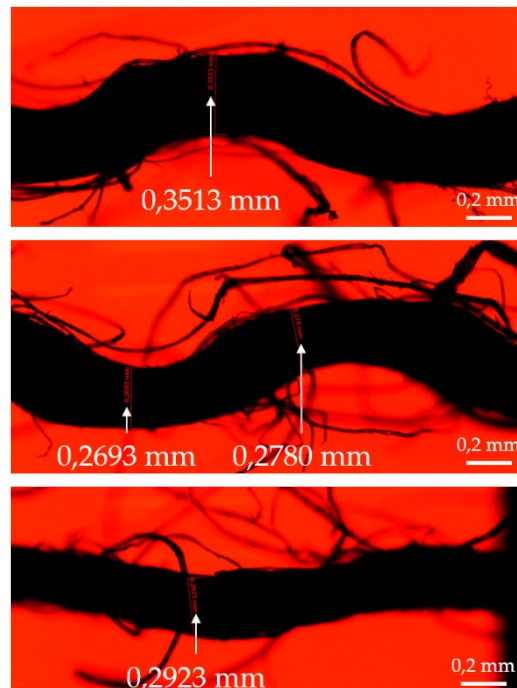


Figure III.1 : Exemples de mesures de diamètre sur fil de chanvre.

Mesurer un diamètre de fil est d'ores et déjà une hypothèse forte qui consiste à affirmer que les fils sont parfaitement circulaires. Cela a comme conséquence une importante dispersion dans la mesure des diamètres. La Figure III.2 montre les diamètres mesurés sous la forme

d'une distribution normale représentant la densité de probabilité normée en fonction du diamètre du fil. La valeur du diamètre moyen des fils de chanvre retenue vaut donc $0,356 \pm 0,092$ mm. Cette valeur permettra d'estimer la contrainte à rupture des fils soumis à de la traction monotone et sera utile pour la détermination de la qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice via l'IFSS.

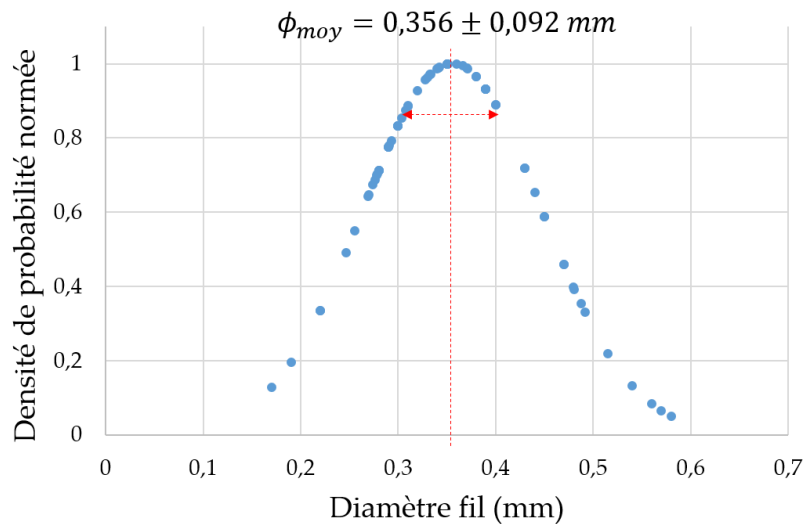


Figure III.2 : Densité de probabilité normée en fonction du diamètre des fils de chanvre, valeur moyenne et écart-type.

III.1.2 Comportement mécanique des fils de chanvre

La Figure III.3 montre quelques exemples de courbes contrainte-déformation apparente caractéristiques de l'ensemble des essais effectués sur les fils de chanvre. Au total, environ une vingtaine de fils ont été sollicités en traction. Les courbes présentent toutes un pied de courbe, synonyme de mise en tension du fil en début d'essai. Ensuite, les courbes présentent une partie linéaire, plus ou moins étendue. Des relâchements de contrainte sont observables à partir de certains niveaux de chargement, correspondant à la rupture de fibres individuelles ou de faisceaux de fibres. Dès qu'un trop grand nombre de faisceaux de fibres cède, l'ensemble du fil rompt et la contrainte appliquée chute.

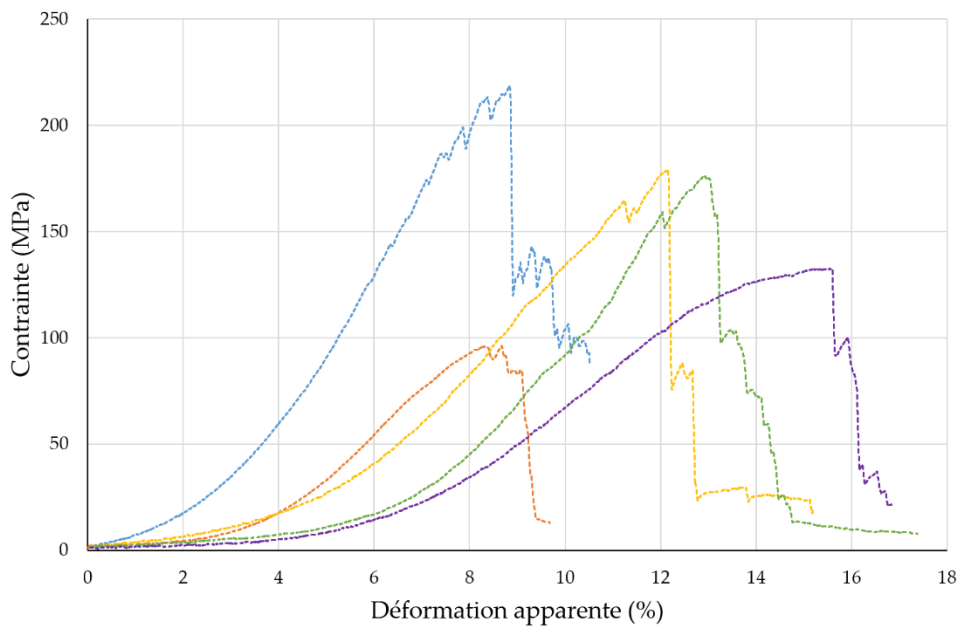


Figure III.3 : Courbes contrainte-déformation apparente caractéristiques des essais de traction monotone sur fils de chanvre.

La grande dispersion observée est caractéristique de ces matériaux naturels. La mesure des modules élastiques apparents a été effectuée sur la partie linéaire, après le pied de courbe et avant la rupture de faisceaux de fibres. Les propriétés mécaniques moyennées sur l'ensemble des essais de traction monotone sur fils seuls sont présentées dans le Tableau III.1.

Tableau III.1 : Propriétés mécaniques en traction des fils de chanvre non vieillis.

	Contrainte maximale (MPa)	Module élastique apparent (GPa)	Déformation apparente à rupture (%)
Fils de chanvre	162 ± 48	$2,36 \pm 0,79$	16 ± 5

III.2 Résines

Les trois résines ont également été testées en traction monotone. Les essais de traction sur la résine Greenpoxy sont issus des travaux de Amélie Perrier [12]. Ceux sur les résines Epolam et Elium ont été réalisés dans le cadre de ce travail. La Figure III.4 présente les courbes contrainte-déformation représentatives de l'ensemble des essais sur les trois résines étudiées.

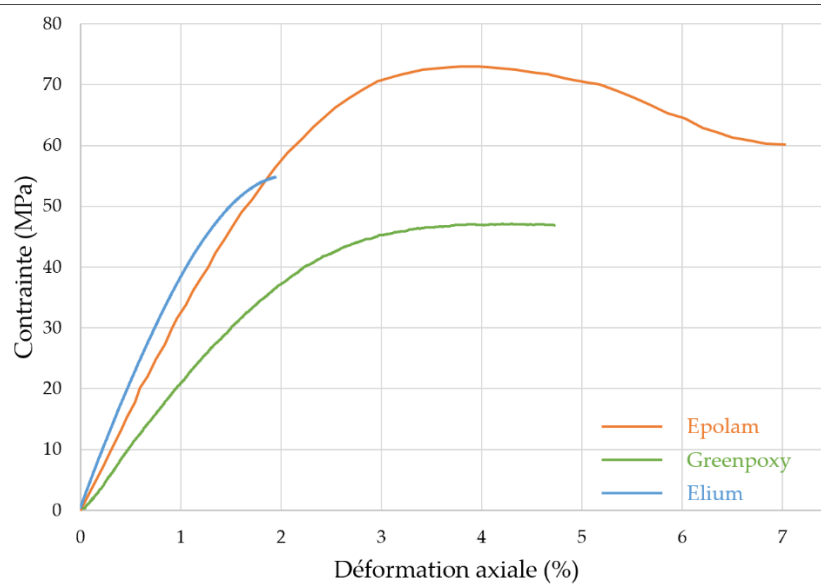


Figure III.4 : Courbes contrainte-déformation des trois résines.

Les comportements mécaniques des résines thermodures sont sensiblement les mêmes (partie élastique linéaire suivie d'un domaine plastique plus ou moins important) malgré des performances différentes : la résine Epolam admet un module d'Young et une contrainte maximale supérieurs de, respectivement, 40% et 46% à ceux de la résine Greenpoxy. La résine Elium, quant à elle, admet un module d'Young supérieur à celui de la résine Epolam (+26%). En revanche, sa contrainte maximale est inférieure à celle de la résine Epolam de 20%. Les trois résines admettent des comportements différents : la résine Elium a un comportement quasi-fragile alors que la Greenpoxy et l'Epolam admettent des déformations plastiques importantes. Les déformations à rupture ainsi que les contraintes maximales et les modules d'Young mesurés sont présentés dans le Tableau III.2.

Tableau III.2 : Propriétés mécaniques en traction des résines Epolam, Greenpoxy [12] et Elium non vieillis.

Résine	Contrainte maximale (MPa)	Module d'Young (GPa)	Déformation à rupture (%)
Epolam	71,5 ± 1,5	3,26 ± 0,21	7,0 ± 0,7
Greenpoxy [12]	49,0 ± 3,0	2,51 ± 0,12	4,3 ± 0,5
Elium	57,1 ± 3,2	4,42 ± 0,23	2,0 ± 0,1

III.3 Composites tissés

Dans cette partie, l'ensemble des résultats issus des essais de traction à chargements répétés progressifs sur les composites tissés non vieillis, d'orientation $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$, est présenté. Dans un premier temps, les propriétés mécaniques macroscopiques seront extraites des courbes contrainte-déformation. Ensuite, les évolutions du module sécant en cours d'essai

seront déterminées et les résultats issus des mesures *in-situ* d'émission acoustique seront discutés. Enfin, une analyse de l'endommagement avant et après essai mécanique sera également réalisée à partir d'images MEB et d'acquisitions microtomographiques.

III.3.1 Propriétés mécaniques macroscopiques

III.3.1.1 Composites non vieillis

La Figure III.5 présente les courbes enveloppes des courbes contrainte-déformation obtenues suite aux chargements et déchargements répétés progressifs. Les courbes issues des essais sur les composites à renforts de chanvre ont été isolées sur les Figures III.5a et III.5c afin d'éviter qu'elles soient « aplaties » par celles des composites verre/Epoxy. La déformation est celle mesurée par l'extensomètre à couteaux et la contrainte correspond à l'effort appliqué sur les composites divisé par la section de chaque échantillon, mesurée juste avant l'essai.

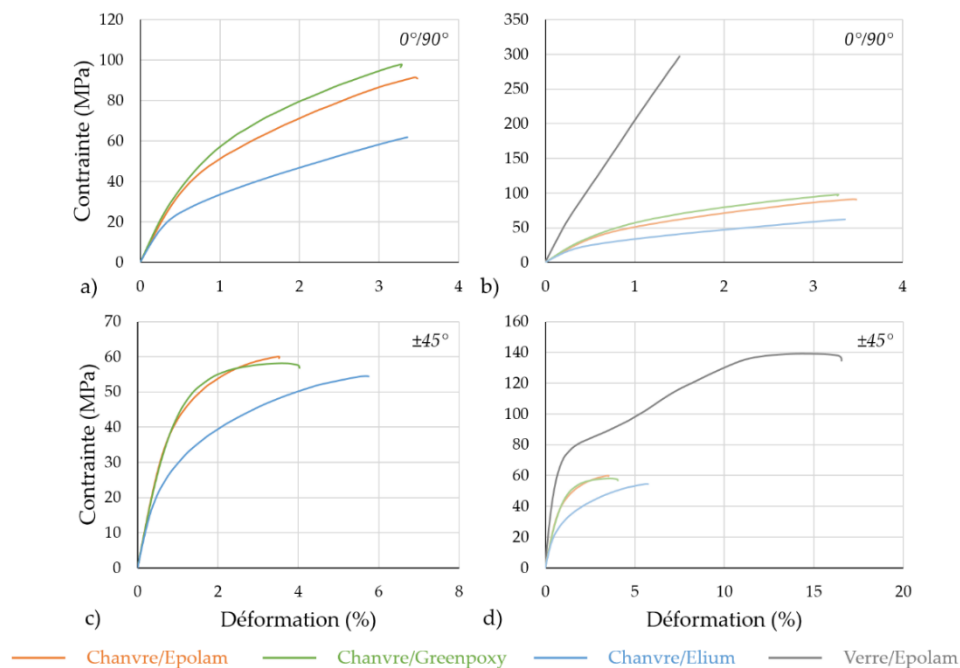


Figure III.5 : Courbes enveloppes contrainte-déformation des composites tissés non vieillis d'orientation $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$ a) et c) à renfort de chanvre et b) et d) à renfort de chanvre et de verre.

Des comportements mécaniques très similaires sont observés pour les composites chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy, quelle que soit l'orientation des tissus. Les composites chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ (Figure III.5a) ont une partie élastique linéaire réduite et admettent une contrainte à rupture plus faible que les composites à renfort de chanvre et à matrice thermodure. Lorsque les tissus sont orientés à $\pm 45^\circ$ (Figure III.5c), les composites

chanvre/Elium ont un comportement plus ductile, avec une limite élastique réduite, mais une contrainte à rupture similaire, par rapport aux chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy. Les composites verre/Epolam 0°/90° ont, comme attendu, un comportement, élastique linéaire et admettent des performances mécaniques bien plus élevées que les composites à renforts de chanvre de même orientation (Figure III.5b). Les composites verre/Epolam ±45° sont également plus rigides et admettent une contrainte à rupture plus importante que les composites à renfort de chanvre d'orientation ±45° (Figure III.5.d). La déformation à rupture très élevée des composites verre/Epolam ±45° est à noter. On peut d'ores et déjà faire l'hypothèse que les fils de chaîne et de trame ont la capacité à se réorienter dans la direction de la traction, augmentant ainsi l'allongement à rupture de ces composites [109]. L'ensemble des propriétés mécaniques des composites non vieillis (module d'Young E_0^0 , contrainte maximale σ_m^0 et déformation à rupture ϵ_r^0) est résumé dans le Tableau III.3.

Tableau III.3 : Propriétés mécaniques de l'ensemble des composites tissés non vieillis.

Matériau		Contrainte maximale σ_m^0 (MPa)	Module d'Young E_0^0 (GPa)	Déformation à rupture ϵ_r^0 (%)
Chanvre/Epolam	0°/90°	92,8 ± 2,0	8,81 ± 0,20	3,0 ± 0,3
	±45°	59,1 ± 1,5	6,38 ± 0,25	3,4 ± 0,3
Chanvre/Greenpoxy	0°/90°	97,9 ± 4,9	8,92 ± 0,23	3,5 ± 0,3
	±45°	56,2 ± 2,7	6,07 ± 0,25	4,0 ± 1,1
Chanvre/Elium	0°/90°	61,9 ± 0,1	6,91 ± 0,35	2,7 ± 1,0
	±45°	54,1 ± 0,6	5,50 ± 0,37	5,3 ± 0,6
Verre/Epolam	0°/90°	300,4 ± 5,1	26,1 ± 0,90	1,5 ± 0,2
	±45°	132,7 ± 9,0	14,7 ± 0,94	17,2 ± 0,9

III.3.1.2 Éprouvettes témoins

Des éprouvettes témoins de chaque composite étudié ont été conservées à température et humidité ambiantes pendant toute la durée de la thèse dans le but de vérifier que les variations de propriétés observées après fatigue hydrique n'étaient pas dues à un vieillissement avec le temps. Des essais de traction monotone ont donc été effectués sur ces éprouvettes témoins en fin de thèse. Les courbes monotones de contrainte-déformation obtenues ont été comparées à celles issues des essais de traction à chargements répétés progressifs sur les composites non vieillis (testés en début de thèse) (Figure III.6). Les résultats montrent bien que les propriétés mécaniques restent inchangées après environ deux années de stockage ambiant, à la dispersion près.

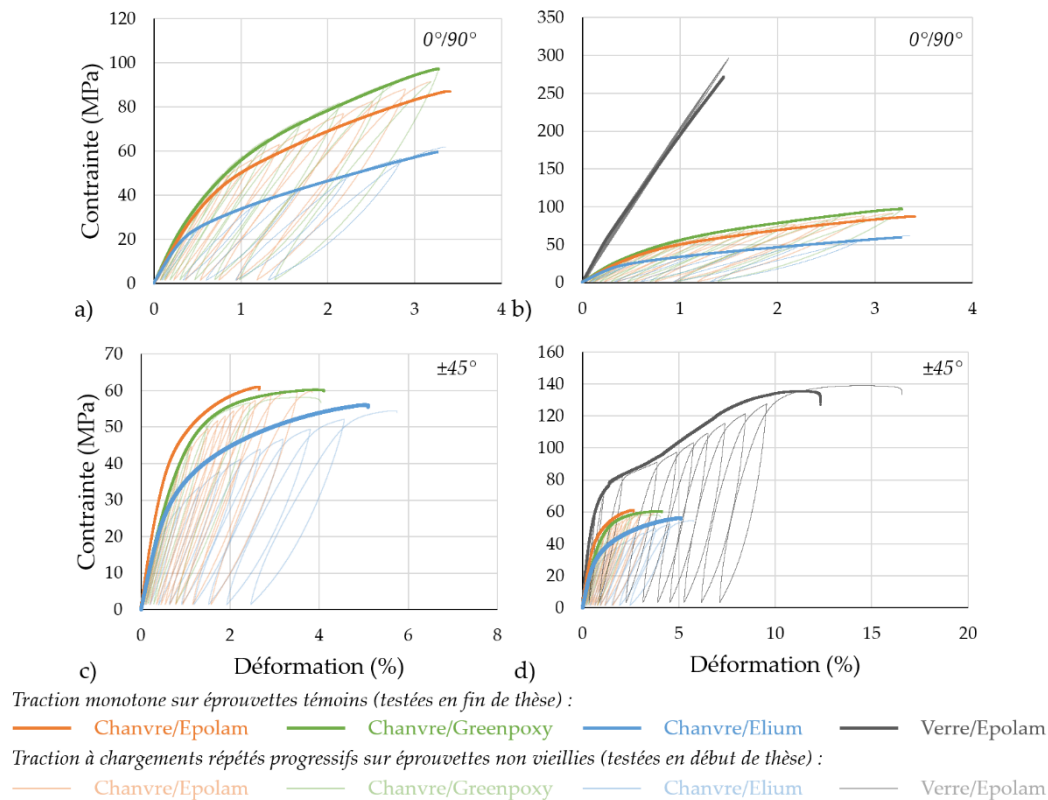


Figure III.6 : Comparaison des courbes contrainte-déformation des composites sollicités en traction monotone après deux ans de stockage à l'ambiante (lignes foncées), avec celles des composites non vieillis (testés en début de thèse) sollicités en chargements répétés progressifs (lignes claires) : a) et c) pour les composites à renfort de chanvre et b) et d) pour tous les matériaux.

III.3.2 Évolutions du module sécant

Les modules sécants ont été mesurés sur les courbes contrainte-déformation tel que décrit dans la Figure II.12 et à l'aide du logiciel de traitement de données *Origin2019* (*OriginLab*). Ainsi, pour chaque niveau de chargement atteint, le rapport $E_{\sigma_0}^i/E_0^i$ est calculé et tracé en fonction de la contrainte appliquée avec, ici, $i = 0$, c'est-à-dire pour les composites non vieillis (Figure III.7). De la même manière que précédemment, les Figures III.7a et III.7c présentent les courbes d'évolution du module sécant normé pour les composites à renfort de chanvre, et sur les Figures III.7b et III.7d les courbes concernant les composites verre/Epolam ont été ajoutées.

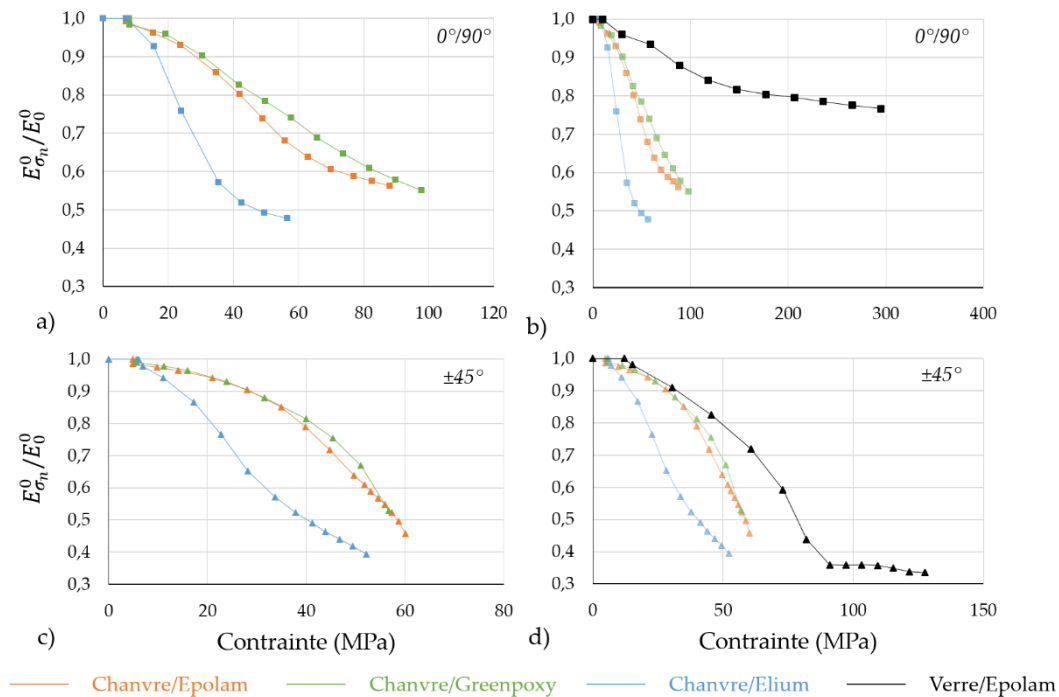


Figure III.7 : Module sécant $E_{\sigma_n}^0$ normé par rapport au module d'Young E_0^0 en fonction de la contrainte appliquée des composites non vieillis : a) et c) à renfort de chanvre et b) et d) à renfort de chanvre et de verre.

Pour les composites chanvre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ et chanvre/Greenpoxy $0^\circ/90^\circ$, la Figure III.7a montre une décroissance progressive du module sécant mesuré pour atteindre une perte de module d'environ 45% en fin d'essai de traction à chargements répétés progressifs. Concernant le composite chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$, la diminution du module sécant est précoce et le module sécant mesuré en fin d'essai atteint moins de 50% du module d'Young. Un point d'inflexion est observé sur les courbes, entraînant un changement de courbure, plus précoce et plus abrupt pour les éprouvettes chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$. Quant au composite verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ (Figure III.7b), la cinétique est bien plus lente. Le module sécant en fin d'essai atteint 77% du module d'Young.

Pour les composites chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ et chanvre/Greenpoxy $\pm 45^\circ$, le module sécant mesuré à chaque boucle d'hystérésis décroît progressivement avec l'augmentation de la contrainte appliquée jusqu'à atteindre une perte de module d'environ 55% (Figure III.7c). En revanche, concernant le composite chanvre/Elium $\pm 45^\circ$, la décroissance du module sécant s'initie plus rapidement, un point d'inflexion est ensuite observé et la cinétique de décroissance ralentit pour atteindre finalement une perte de module en fin d'essai d'environ 60%. Enfin, la Figure III.7d montre, pour les faibles niveaux de contrainte, une évolution du module sécant des composites verre/Epolam $\pm 45^\circ$ similaire à celle des composites chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy de même orientation. Pour les composites verre/Epolam, la perte en module atteint ensuite des valeurs supérieures à celle des composites à renfort de chanvre et un changement de concavité brusque apparaît en fin d'essai. Finalement, la perte de module juste avant la rupture est de 65%.

III.3.3 Analyse des endommagements

III.3.3.1 Suivi acoustique

L'ensemble des essais de traction à chargements répétés progressifs a été instrumenté de capteurs d'émission acoustique tel que décrit en partie II.4.1. La vitesse des ondes acoustiques est une grandeur caractéristique qui a été mesurée avant chaque essai. Le Tableau III.4 récapitule les valeurs obtenues. La vitesse des ondes au sein des composites verre/Epolam est nettement supérieure à celle dans les composites à renfort de chanvre, ce qui s'explique par la meilleure conduction des fibres de verre. On remarque également une nette différence entre les matériaux dont les renforts sont orientés à $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$: les éprouvettes $0^\circ/90^\circ$ ont la capacité de transporter plus rapidement les ondes du fait de l'alignement des capteurs d'émission acoustique avec la direction des fils de chaîne.

Tableau III.4 : Vitesse des ondes acoustiques en fonction du composite pour un stockage ambiant.

	Chanvre/Epolam		Chanvre/Greenpoxy		Chanvre/Elium		Verre/Epolam	
	$0^\circ/90^\circ$	$\pm 45^\circ$	$0^\circ/90^\circ$	$\pm 45^\circ$	$0^\circ/90^\circ$	$\pm 45^\circ$	$0^\circ/90^\circ$	$\pm 45^\circ$
Vitesse des ondes acoustiques (m/s)	2,74	2,33	2,56	2,37	2,62	2,41	3,42	2,76

Plusieurs méthodes permettent de comparer les cinétiques et les mécanismes d'endommagement des matériaux. En sortie d'essai, le système d'acquisition d'émission acoustique permet d'extraire notamment l'amplitude et l'énergie absolue des événements acoustiques. Il est également possible d'étudier le nombre d'émissions acoustiques par essai. Cette dernière façon de traiter les données d'émissions acoustiques n'est pas adaptée dans le cadre d'une sollicitation en traction à chargements répétés progressifs. En effet, le nombre d'événements acoustiques est fortement dépendant du nombre de boucles d'hystérésis décrit lors de la sollicitation mécanique par effet Felicity, phénomène couramment rencontré pour des matériaux composites sollicités de manière cyclique [11], [110], [111]. Lors d'une sollicitation cyclique, cet effet se caractérise par la présence d'événements acoustiques pour des niveaux de contrainte et déformation inférieurs à ceux atteints lors de la boucle précédente. Ces événements acoustiques sont généralement associés à des frottements à l'interface fil/matrice et des ouvertures (lors des phases de charge) et fermetures (lors des phases de décharge) de fissures. Afin de s'affranchir du biais dû à la traction à chargements répétés progressifs, il a été décidé de travailler en énergie absolue cumulée normée. Cette façon de procéder permet en effet de limiter la dépendance des résultats au nombre de boucles d'hystérésis, les éventuels frottements n'engendrant pas d'événements acoustiques de fortes énergies. La Figure III.8 montre un exemple de dépouillement d'un essai instrumenté de traction à chargements répétés progressifs pour une éprouvette chanvre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ stockée à température et humidité ambiantes. Les courbes contrainte-temps et énergie absolue

cumulée normée-temps y sont représentées en Figure III.8a. L'énergie cumulée normée Σ_{CN} en cours d'essai est définie selon l'équation III.1 :

$$\Sigma_{CN} = \frac{\Sigma_C(t)}{\Sigma_C(\text{rupture})} \quad (\text{III.1})$$

avec $\Sigma_C(t)$ l'énergie absolue cumulée à l'instant t et $\Sigma_C(\text{rupture})$ l'énergie absolue cumulée en fin d'essai mécanique. La courbe énergie absolue cumulée normée-contrainte (Figure III.8b) est obtenue en combinant les deux courbes de la Figure III.8a. Afin de pouvoir comparer les cinétiques d'endommagement de l'ensemble des matériaux, un seuil d'endommagement a été défini et arbitrairement fixé à la contrainte nécessaire pour atteindre 5% de l'énergie acoustique (EA) cumulée totale (Figure III.8b).

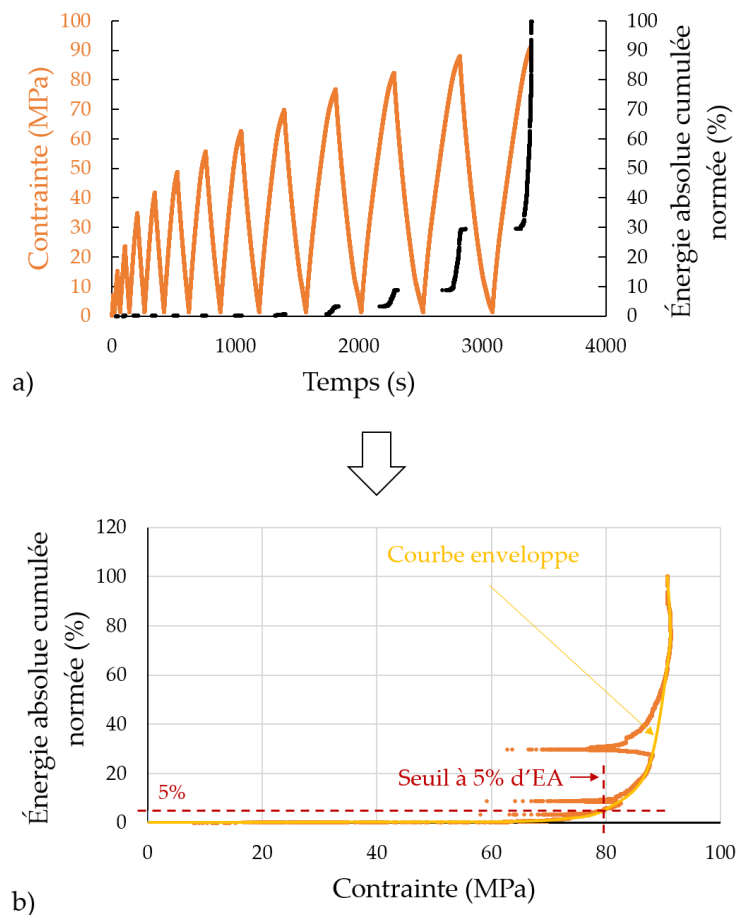


Figure III.8 : Dépouillement des données d'émissions acoustiques en fonction de la contrainte appliquée lors d'un essai de traction à chargements répétés progressifs sur chanvre/Epolam 0°/90° stockage ambiant : a) contrainte appliquée et énergie absolue cumulée normée en fonction du temps, b) énergie absolue cumulée normée en fonction de la contrainte appliquée, courbe enveloppe et définition du seuil à 5% d'EA.

La Figure III.9 montre les courbes énergie absolue cumulée normée-contrainte pour l'ensemble des éprouvettes non vieillis. Les Figures III.9a et III.9c concernent uniquement les composites

à renfort de chanvre (respectivement, $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$) et les composites verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$ ont été ajoutés sur, respectivement, les Figures III.9b et III.9d. Une première phase, durant laquelle l'énergie absolue cumulée reste proche de zéro, est observée quel que soit le matériau. En effet, en début d'essai, les événements acoustiques qui ont lieu sont de faibles énergies, synonyme de fissurations matricielles et d'endommagements à l'interface fil/matrice. Concernant les composites à renfort de chanvre, les cinétiques d'endommagement sont sensiblement les mêmes, avec un décalage des courbes vers la gauche pour les composites chanvre/Elium signifiant un seuil d'endommagement plus précoce. On remarquera également que les changements de courbure sont moins brutaux pour les composites à renfort de verre.

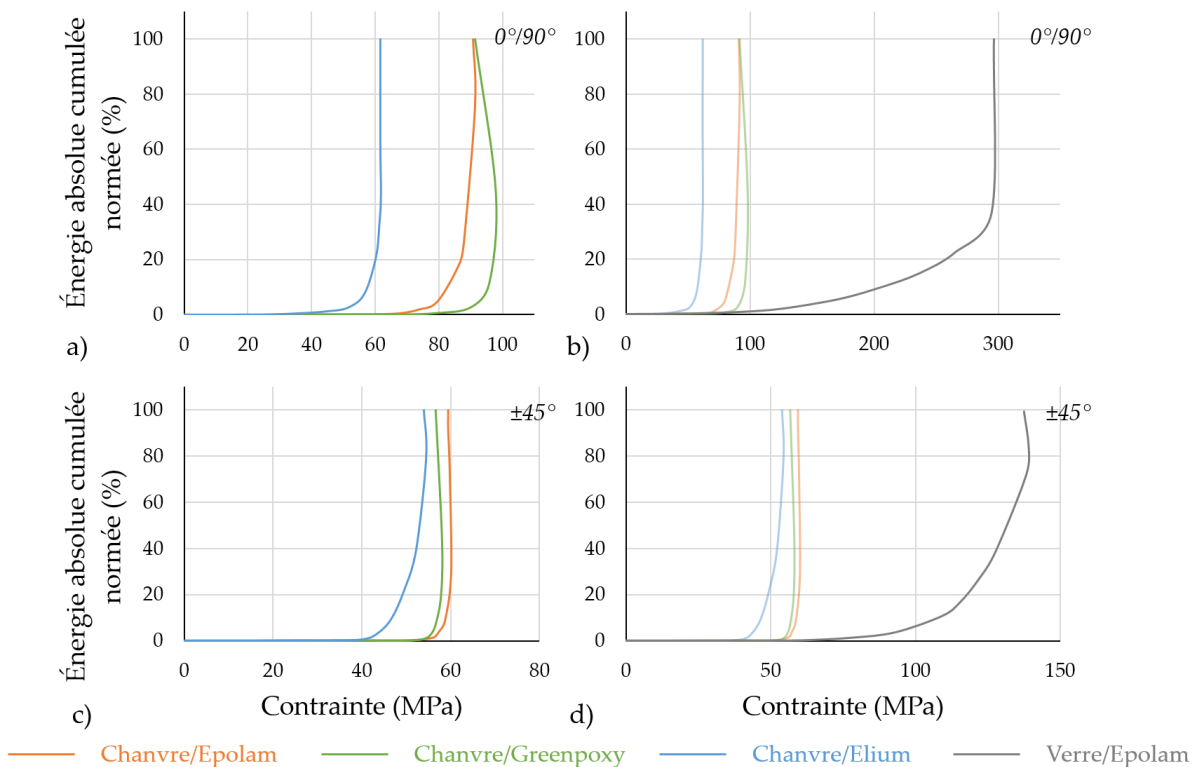


Figure III.9 : Énergie absolue cumulée normée en fonction de la contrainte appliquée pour les composites non vieillis à renfort de chanvre a) orientés à $0^\circ/90^\circ$ et c) orientés à $\pm 45^\circ$ et pour l'ensemble des composites b) $0^\circ/90^\circ$ et d) $\pm 45^\circ$.

La Figure III.10 présente sous forme d'histogramme les seuils à 5% d'EA relevés pour l'ensemble des composites non vieillis. On observe que les composites dont les renforts sont orientés à $\pm 45^\circ$ admettent des seuils d'endommagement plus faibles. Autrement dit, la contrainte nécessaire pour atteindre 5% de l'énergie acoustique cumulée totale est plus importante pour les composites dont les renforts sont orientés à $0^\circ/90^\circ$. Finalement, les Figures III.9 et III.10 montrent des seuils d'endommagement similaires pour les composites chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy, le chanvre/Elium étant un peu plus précoce, ce qui est

en accord avec les comportements mécaniques relevés (Figure III.5). Les composites à renfort de verre admettent, quant à eux, des seuils d'endommagement nettement plus élevés.

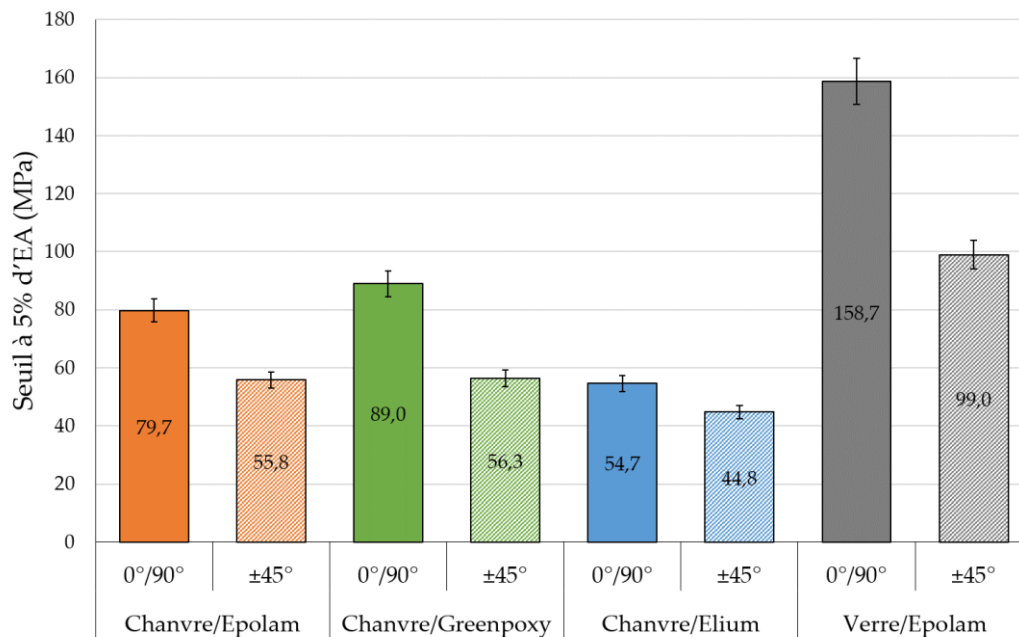


Figure III.10 : Seuil à 5% d'EA pour l'ensemble des composites tissés stockés à l'ambiante.

La méthode décrite en partie II.4.1.3 a également été utilisée afin de distinguer les événements acoustiques en trois classes d'endommagement : fissuration matricielle, décohésion à l'interface fil/matrice et rupture de fibres. La Figure III.11 présente les différentes parts énergétiques des trois types d'endommagement classés. Pour les composites à renfort de chanvre, la part la plus importante revient aux ruptures de fibres. En effet, comparativement aux deux autres mécanismes d'endommagement, les ruptures de fibres libèrent une quantité d'énergie très importante. Ainsi, entre 86% et 97% de l'énergie émise pendant les essais de traction à chargements répétés progressifs sur les composites à renfort de chanvre proviennent de ruptures de fibres. La Figure III.11 montre également que les ruptures matricielles représentent une très faible part d'énergie émise en cours d'essai, quel que soit le matériau. La part énergétique émise par des décohésions à l'interface fil/matrice se situe entre 3% et 13% pour les composites à renfort de chanvre. En revanche, ce sont les composites dont les renforts sont orientés à $\pm 45^\circ$ qui émettent le plus d'énergie en provenance de décohésions fil/matrice. En effet, cela est dû au fait que dans les composites $\pm 45^\circ$ l'interface est davantage sollicitée, par cisaillement, que dans les composites $0^\circ/90^\circ$. Quant aux composites à renfort de verre, les répartitions de proportions sont assez différentes. Les composites verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ émettent jusqu'à 34% d'énergie provenant de décohésions fil/matrice. Cela peut être dû au fait que les ruptures de fibres ont lieu aux tout derniers instants des essais mécaniques, ne permettant pas ainsi d'atteindre une part énergétique plus importante. Concernant les composites verre/Epolam $\pm 45^\circ$, c'est l'énergie émise par les décohésions fil/matrice qui est la

plus importante en proportion. Cela s'explique par le fait que, dans ces composites, les fils initialement à $\pm 45^\circ$ ont tendance à se réaligner dans la direction de traction ce qui crée des endommagements aux interfaces fil/matrice.

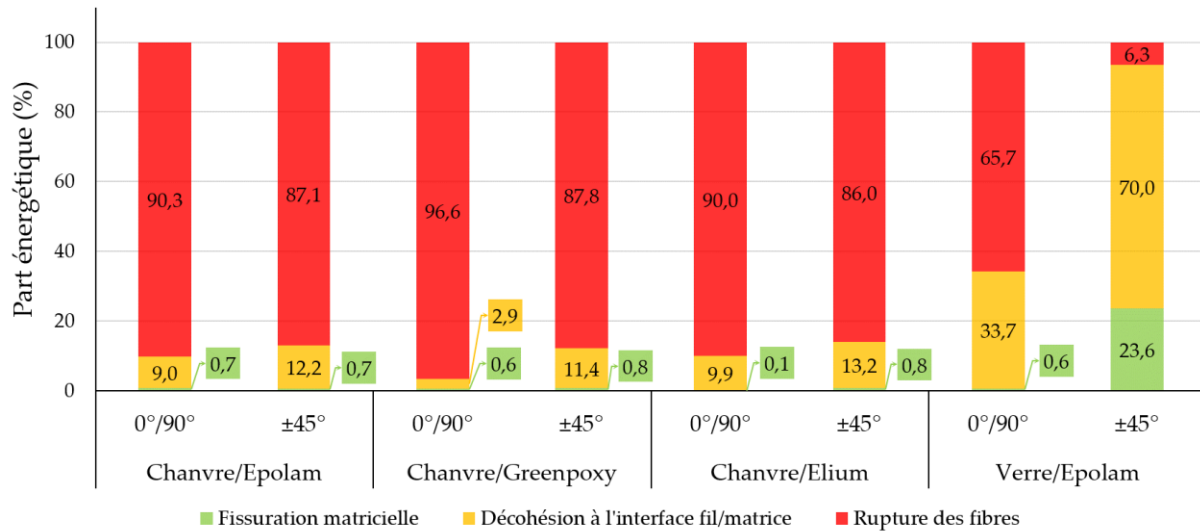


Figure III.11 : Part énergétique des différents types d'endommagement (fissuration matricielle, décohésion à l'interface fil/matrice et rupture de fibres) lors des essais de traction à chargements répétés progressifs sur les composites tissés non vieillis.

III.3.3.2 Observations des faciès de rupture

Après rupture des éprouvettes en traction, les faciès de rupture ont été observés par MEB. La Figure III.12 présente des images caractéristiques de ce qui a été observé sur l'ensemble des acquisitions pour les composites tissés étudiés. Les trois phases du composite sont observables : matrice, fil (chanvre et verre) et interface fil/matrice. On remarquera en particulier que l'interface fil/matrice semble être bien plus dégradée pour les composites verre/Epolam $\pm 45^\circ$, ce qui est en accord avec leur déformation à rupture très importante (Figure III.6) et avec la part énergétique associée à des décohésions fil/matrice prédominante (Figure III.11).

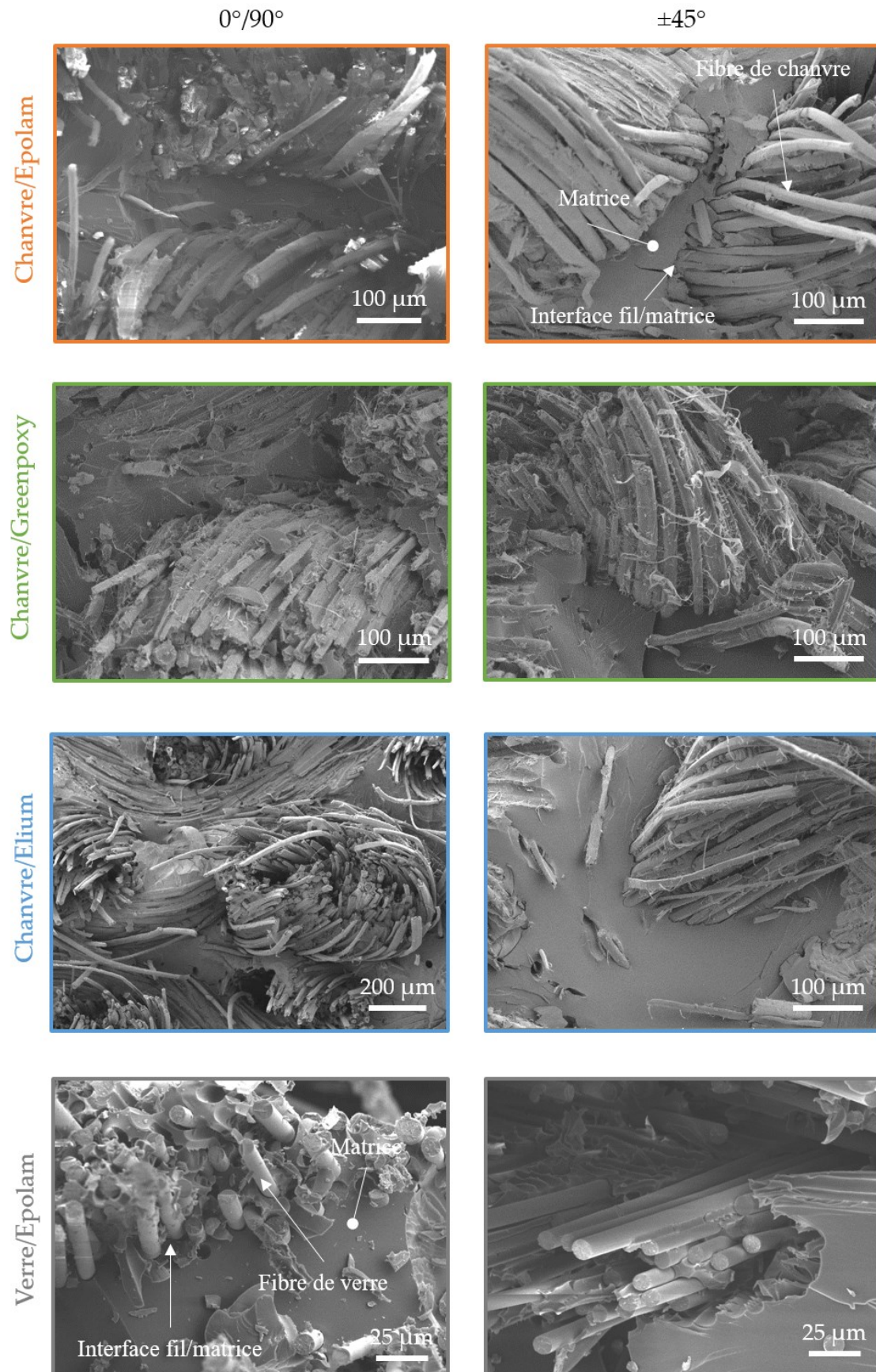


Figure III.12 : Images au microscope électronique à balayage des faciès de rupture en traction des composites de l'étude après un stockage ambiant.

III.3.3.3 Observations microtomographiques avant et après essai mécanique

Des acquisitions d'images microtomographiques avec une résolution de 15 microns par voxel ont été réalisées avant et après essai mécanique pour l'ensemble des composites à renfort de chanvre stockés à température et humidité ambiantes. Les composites verre/Epilam ont quant à eux été scannés uniquement après rupture. Les Figures III.13, III.14 et III.15 montrent pour chaque matériau une slice centrale issue du stack XZ. Avant essai mécanique, les images microtomographiques ont permis de valider la fabrication des éprouvettes et de calculer un taux de porosité initial inférieur à 1%, correspondant soit à des bulles d'air emprisonnées lors de la fabrication par infusion sous vide, soit à des manques d'imprégnation au cœur de certains fils (Figures III.13 et III.14). Après essai de traction à chargements répétés progressifs, plusieurs types d'endommagement sont observables : des décohésions fil/matrice et des fissures matricielles (Figure III.13 et III.14).

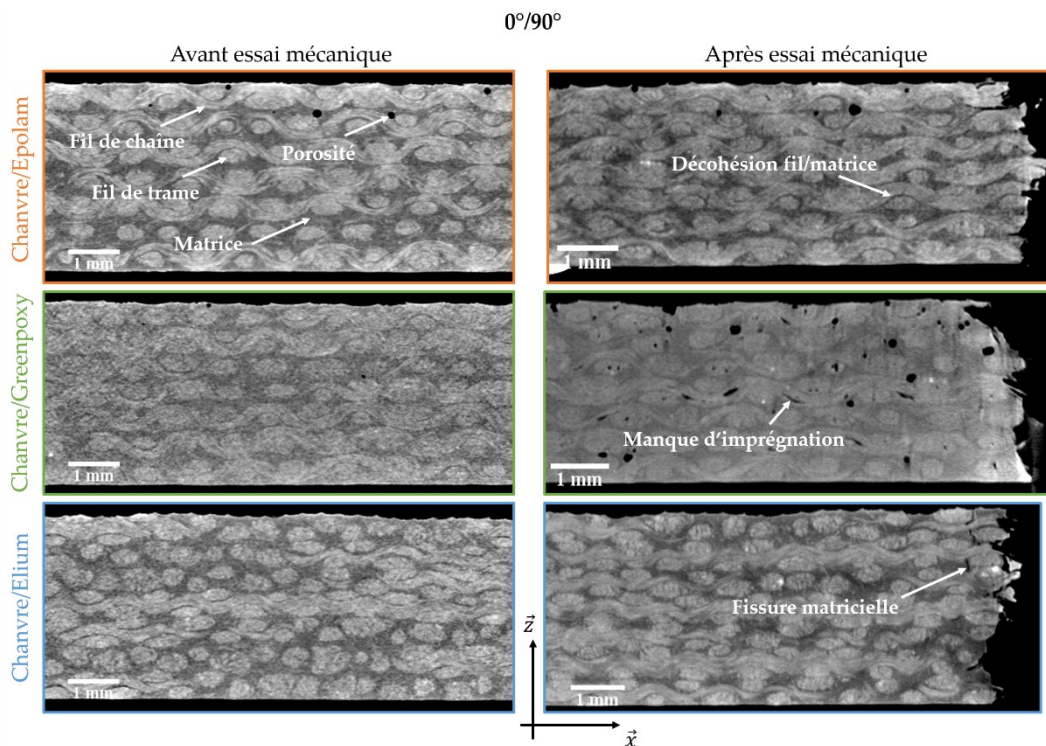


Figure III.13 : Microtomographies des composites non vieillis à renfort de chanvre orienté à $0^\circ/90^\circ$ avant et après essai de traction.

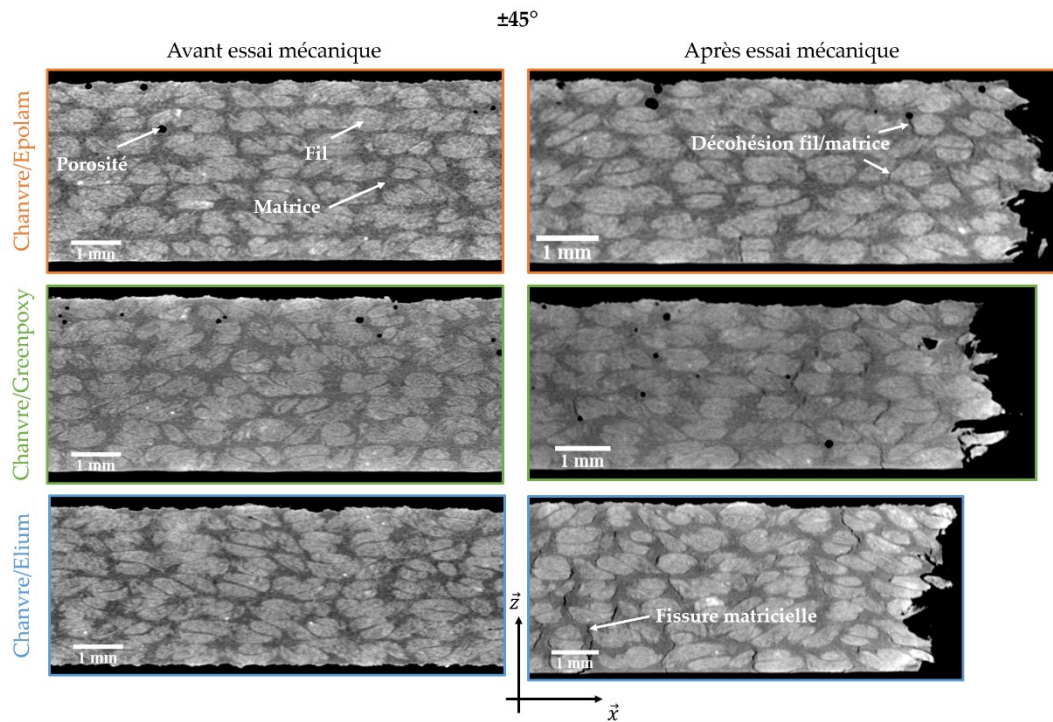


Figure III.14 : Microtomographies des composites non vieillis à renfort de chanvre orienté à $\pm 45^\circ$ avant et après essai de traction.

Les images microtomographiques de la Figure III.15 correspondent aux composites verre/Epolam après essai mécanique. Les acquisitions effectuées avec une résolution de 15 microns par voxels ne permettent pas de distinguer la matrice des endommagements. Malgré plusieurs tentatives, il n'a finalement pas été possible d'analyser correctement les endommagements des composites verre/Epolam par cette technique. Par la suite, uniquement les images tomographiques des composites à renfort de chanvre seront traitées.

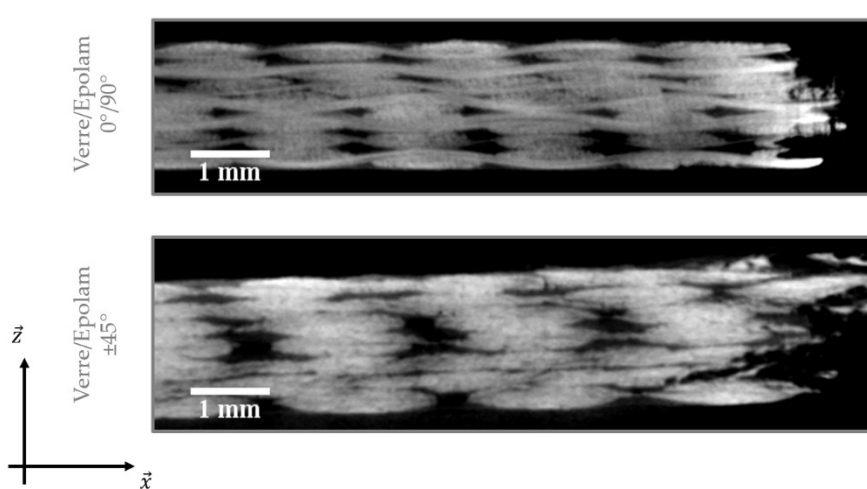


Figure III.15 : Microtomographies des composites non vieillis à renfort de verre orienté à $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$ après rupture en traction.

III.4 Interface

Afin de quantifier la qualité d'adhésion à l'interface, des essais de fragmentation ont été menés sur des éprouvettes monofilamentaires composées d'un fil de chanvre et de deux résines : Epolam et Greenpoxy. Les essais de fragmentation permettront de déterminer la contrainte maximale de cisaillement à l'interface fil/matrice (IFSS) définie en partie I.1.3 par l'équation I.2. Un essai de fragmentation supplémentaire a également été réalisé sur une éprouvette monofilamentaire chanvre/Epolam dans le but de déterminer les champs de déformation 2D et 3D au voisinage du fil de chanvre, par les techniques de corrélation d'images numériques DIC et DVC.

III.4.1 Essais de fragmentation

Les essais de fragmentation ont été réalisés à des vitesses suffisamment lentes pour atteindre la saturation en fragments. Quatre éprouvettes monofilamentaires chanvre/Epolam (MChEP) ont ainsi permis d'obtenir 45 fragments et trois éprouvettes monofilamentaires chanvre/Greenpoxy (MChGP) ont donné lieu à l'apparition de 20 fragments. La Figure III.16 présente des courbes contrainte-déformation apparente issues d'essais de fragmentation sur des éprouvettes MChEP et MChGP, avec des zooms correspondant aux régions des courbes où se sont produits des fragmentations qui se traduisent par un abaissement de l'effort appliqué. Deux courbes sont présentées pour chaque matériau. On constate une très bonne reproductibilité des essais pour un matériau donné.

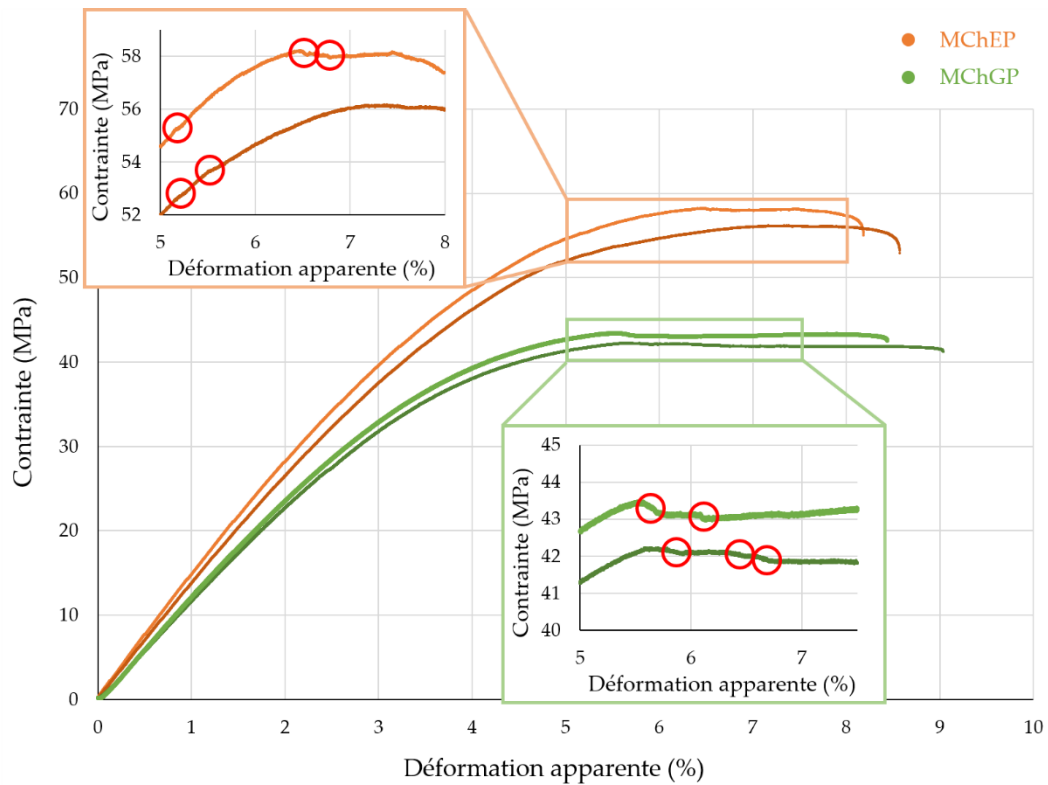


Figure III.16 : Courbes contrainte-déformation apparente d'éprouvettes monofilamentaires non vieilles MChEP et MChGP, et zooms lors de quelques fragmentations (entourées en rouge).

Après rupture des éprouvettes, la longueur de chacun des fragments obtenus est mesurée tel que décrit en partie I.1.3. La Figure III.17 montre les fonctions de distribution de Weibull (Équation I.3) associées aux longueurs critiques des fragments (Équation I.1). Les valeurs dominantes, relevées pour $F(x) = 0,35$, sont extraites de ces courbes et les dispersions associées sont également représentées sur la Figure III.17. Ainsi, malgré des dispersions importantes, la longueur critique des fragments des éprouvettes MChEP est sensiblement inférieure à celle pour les éprouvettes MChGP ($1,53 \pm 0,70$ mm contre $2,58 \pm 0,82$ mm).

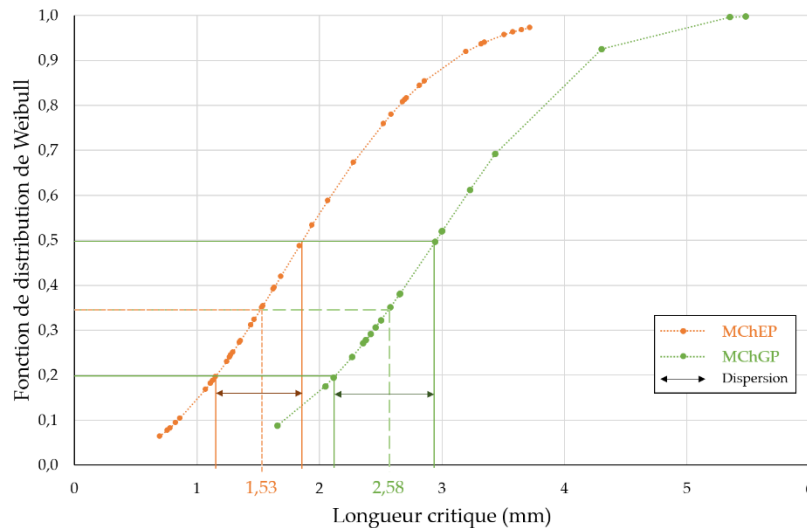


Figure III.17 : Fonction de distribution de Weibull en fonction de la longueur critique de fragment pour les éprouvettes monofilamentaires non vieilles MChEP et MChGP, valeurs dominantes et dispersions.

Afin d'obtenir une valeur de la contrainte maximale de cisaillement à l'interface fil/matrice (IFSS), l'ensemble des contraintes maximales issues des essais de traction sur fil de chanvre de longueur l_0 est représenté sous la forme d'une fonction de distribution de Weibull (Équation I.3). La valeur dominante relevée permet de calculer la valeur théorique de la contrainte maximale d'un fil de chanvre de longueur l_c , via le paramètre α_w de la fonction de distribution de Weibull (Équation I.4). Ainsi, la Figure III.18 montre la distribution de Weibull des contraintes maximales relevées à l'issue de 13 essais de traction monotone sur fil de chanvre. La valeur dominante relevée vaut $\sigma_f(l_0) = 120,2 \pm 81,2$ MPa.

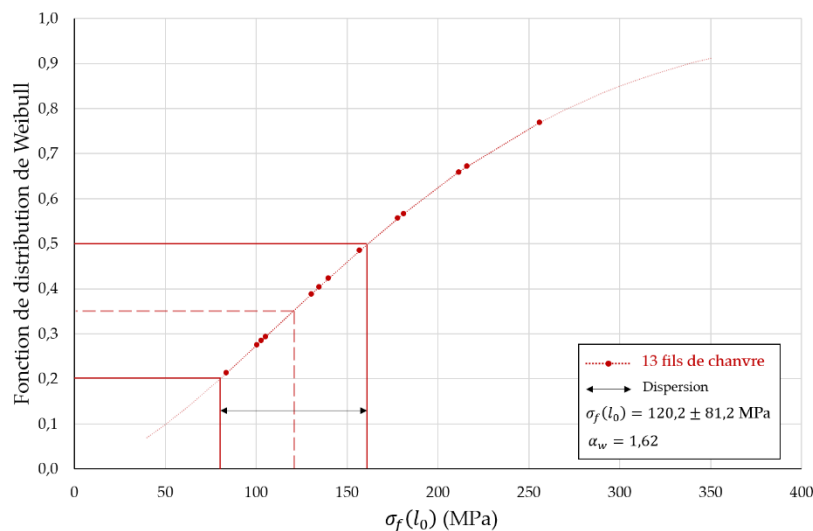


Figure III.18 : Fonction de distribution de Weibull en fonction de la contrainte maximale $\sigma_f(l_0)$ issue de 13 essais de traction monotone sur fil de chanvre non vieilli.

Le Tableau III.5 récapitule l'ensemble des données nécessaires au calcul de l'IFSS pour les éprouvettes MChEP et MChGP. Les résultats montrent que la valeur calculée de l'IFSS pour le couple chanvre/Greenpoxy est inférieure de 40% à celle du couple chanvre/Epolam. Cependant, cette différence ne se retrouve pas à l'échelle des composites tissés (Tableau III.3). Une explication possible est la difficulté de déterminer une valeur correcte de la contrainte à rupture du fil pour une longueur l_c . La valeur calculée en faisant intervenir le paramètre α_w est nécessairement une valeur approchée.

Tableau III.5 : Calcul de la contrainte maximale de cisaillement à l'interface fil/matrice (IFSS) pour les composites monofilamentaires non vieillis chanvre/Epolam (MChEP) et chanvre/Greenpoxy (MChGP).

Matériau	$\sigma_f(l_0)$ (MPa)	α_w	$\sigma_f(l_c)$ (MPa)	l_c (mm)	d (mm)	IFSS (MPa)
MChEP	120 ± 81	1,62	383 ± 259	$1,53 \pm 0,70$	$0,356 \pm 0,092$	$44,6 \pm 13,0$
MChGP			277 ± 187	$2,58 \pm 0,82$		$26,4 \pm 7,7$

Pour s'affranchir de ces calculs, la qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice peut également être comparée directement via les longueurs de décohesion l_d mesurées pour chacun des couples fil/matrice. La Figure III.19 présente les distributions de Weibull correspondantes. Les couples chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy admettent des valeurs dominantes de longueur de décohesion très proches : $0,384 \pm 0,156$ mm pour les éprouvettes MChEP contre $0,338 \pm 0,082$ mm pour celles MChGP. Ainsi, par cette méthode, l'adhésion à l'interface fil/matrice des deux couples MChEP et MChGP semblent être de même qualité, ce qui concorde avec les résultats similaires obtenus à l'échelle des composites tissés (Tableau III.3).

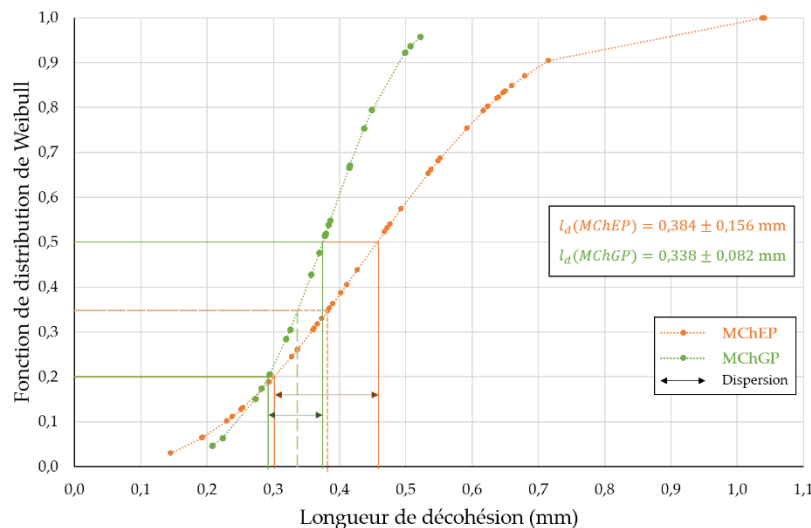


Figure III.19 : Fonction de distribution de Weibull en fonction des longueurs de décohesion pour les composites monofilamentaires non vieillis MChEP et MChGP, valeurs dominantes et dispersions.

Des observations au MEB ont également été réalisées afin d'examiner les faciès de rupture des éprouvettes monofilamentaires MChEP et MChGP (Figure III.20). La Figure III.20 montre une

bonne imprégnation des résines Epolam et Greenpoxy au sein du fil de chanvre. Sur des grossissements plus importants ($\times 5000$), on distingue bien le lumen des fibres. De plus, des décohésions importantes entre le fil et la matrice, mais également entre les fibres du fil et la matrice (déchaussement), ont été observées. Globalement, on n'observe pas de différence notable de faciès rupture entre les deux matériaux.

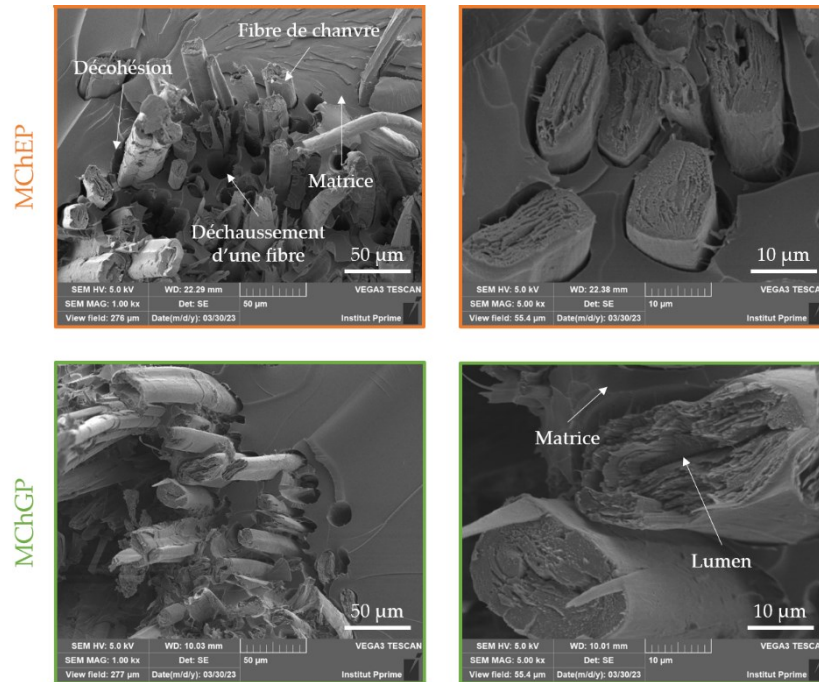


Figure III.20 : Images au microscope électronique à balayage des faciès de rupture des composites MChEP et MChGP pour deux grossissements différents.

III.4.2 Mesure des champs de déformation par corrélation d'images numériques

III.4.2.1 Mise en place de l'essai de fragmentation interrompu

Afin de mieux comprendre les mécanismes de déformation et d'endommagement qui ont lieu au cours d'un essai de fragmentation, un essai interrompu, avec acquisitions d'images microtomographiques à différents niveaux de déformation, a été réalisé. Le couple fil/matrice sélectionné est le chanvre/Epolam. Une éprouvette monofilamentaire a donc été fabriquée en prélevant un fil d'un diamètre mesuré égal à $156 \pm 20 \mu\text{m}$ issu d'une bobine de chanvre. De la poudre d'alumine (Al_2O_3) a été mélangée à la résine Epolam à hauteur de 14% en volume. C'est cette poudre, de densité supérieure à la résine polymère, qui servira de mouchetis lors des acquisitions microtomographiques. La Figure III.21 montre la géométrie de l'éprouvette monofilamentaire utilisée. Les dimensions de l'éprouvette ont été modifiées par rapport aux

éprouvettes monofilamentaires précédentes, avec des talons moins larges et une longueur utile raccourcie. La diminution de la largeur des talons permet de réduire la largeur globale de l'éprouvette monofilamentaire, permettant ainsi d'obtenir une résolution d'images améliorée en rapprochant l'éprouvette de la source de rayons X. La longueur utile a également été réduite dans le but d'obtenir un scan complet de la zone utile en une unique rotation de l'échantillon sur la platine rotative du microtomographe, réduisant ainsi le temps d'acquisition à 4h. La taille des voxels ainsi obtenue est de 3 μm par côté.

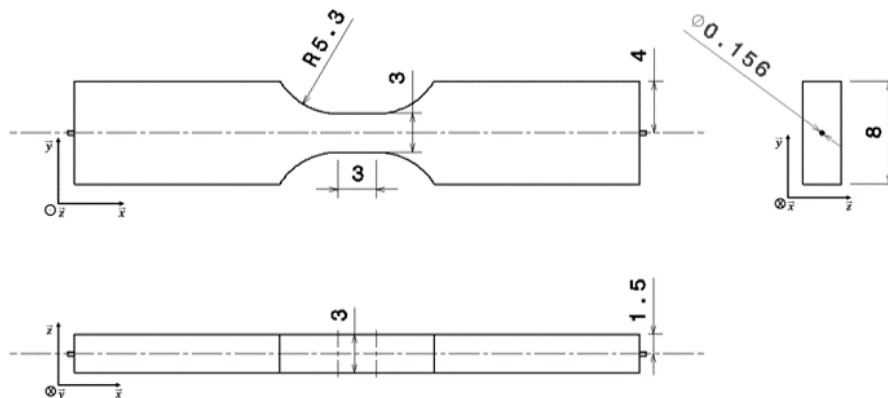


Figure III.21 : Géométrie de l'éprouvette monofilamentaire chanvre/Epilam pour l'analyse des champs de déformation par corrélation d'images numériques microtomographiques.

La Figure III.22a montre une représentation 3D de l'éprouvette monofilamentaire de l'étude sur laquelle la zone scannée par microtomographie est encadrée en rouge. Les trois faces colorées représentent les plans XZ (en bleu), YZ (en jaune) et XY (en vert). Les flèches orange suivant l'axe \vec{x} symbolisent la traction. Sur le zoom de la Figure III.22a (encadré rouge), quatre marqueurs sont représentés sur chacune des faces de la zone utile. Ces marqueurs sont nécessaires lors de la reconstruction des images microtomographiques entre chaque étape de l'essai de fragmentation. En effet, les calculs de DIC et de DVC doivent se faire en utilisant des slices ou des stacks reconstruits exactement de la même manière. La difficulté vient du fait que l'essai de fragmentation, interrompu, est réalisé « ex-situ ». Ainsi, il a été nécessaire de développer une méthode spécifique afin de reconstruire le même volume à chaque étape de l'essai de fragmentation. Quatre marqueurs réalisés à partir d'une laque chargée en poudre d'argent ont donc été tracés sur chacune des faces de la zone utile. Ces marqueurs ont ensuite été utilisés à chaque reconstruction microtomographique comme des repères permettant d'assurer un parallélisme entre les différents plans de l'espace, le plus précis possible, à chaque étape de l'essai de fragmentation.

La Figure III.22b montre un exemple de trois slices centrées autour du fil de chanvre. Sur le scan, le fil de chanvre, composé de plusieurs fibres, apparaît en gris clair. Le mouchetis, en blanc, généré par ajout d' Al_2O_3 dans la matrice Epilam, est bien visible. La présence de quelques porosités et de manques d'imprégnation, évaluée à 0,4%, est à noter (en noir sur les

scans). On retrouve enfin un des marqueurs en laque d'argent sur une des faces de la zone utile (en blanc).

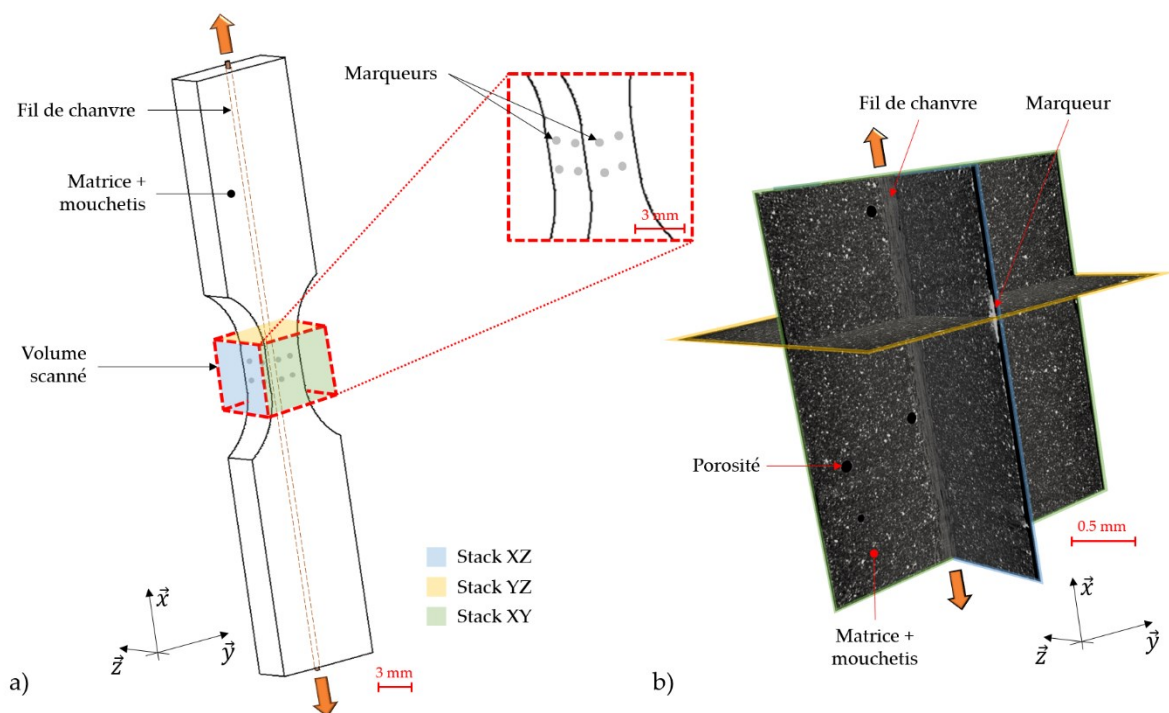


Figure III.22 : a) Schéma 3D de l'éprouvette monofilamentaire, volume scanné et marqueurs. b) Exemple de trois slices centrées autour du fil de chanvre avant chargement.

III.4.2.2 Simulation par éléments finis

Un calcul préliminaire par éléments finis a tout d'abord été réalisé en utilisant le logiciel *Abaqus*. La Figure III.23 montre les deux constituants du modèle numérique : un cylindre rigide homogène de diamètre constant représentant le fil de chanvre (Figure III.23a) et la matrice représentant la géométrie de l'échantillon (Fig. III.23b). L'échantillon a été maillé avec deux types d'éléments pour réduire le temps de calcul et faciliter sa convergence : pour les talons, environ 13000 éléments linéaires de type C3D8 et pour la zone utile, environ 10000 éléments quadratiques raffinés de type C3D20R. Pour les deux matériaux (fil et matrice), les lois de comportement sont basées sur les travaux de Guillebaud-Bonafous et al. [112]. Un comportement élasto-plastique a été attribué à la matrice et le fil de chanvre a été considéré comme anisotrope avec un comportement élastique. En ce qui concerne les conditions aux limites (Figure III.24), les déplacements sont nuls sur un talon dans les trois directions et un déplacement égal à 0,1 mm a été appliqué sur l'autre extrémité, le long de l'axe de traction \vec{x} . L'interface fil/matrice est supposée parfaite, avec une interaction du type *tie constraint*.

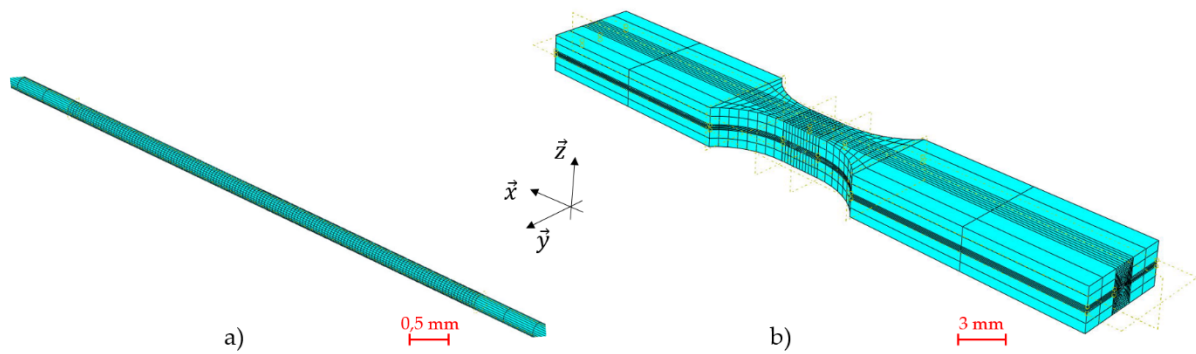


Figure III.23 : Modélisation a) du fil de chanvre et b) de la matrice.

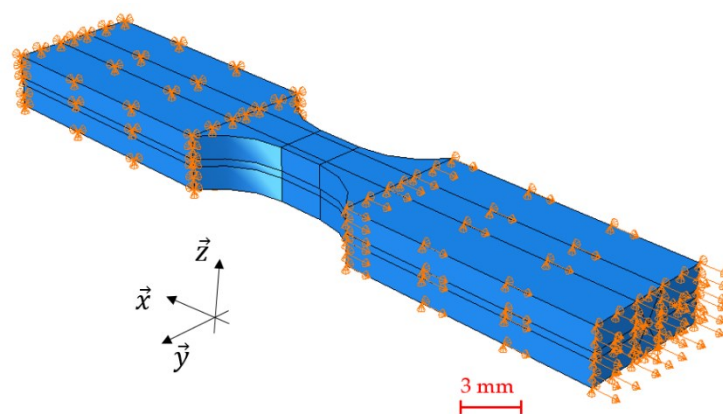


Figure III.24 : Conditions aux limites appliquées au modèle numérique assemblé.

Pour simuler l'essai de fragmentation, des calculs ont été effectués pour différentes configurations. Une analyse préliminaire a été réalisée pour une éprouvette monofilamentaire sans fragment le long du fil. Ensuite, jusqu'à trois fragments de fil ont été ajoutés au modèle. Pour chaque fragmentation, la rupture du fil correspond à une suppression d'une section de fil, d'épaisseur égale à un élément (option « *Deactivated in this step* » dans Abaqus, Figure III.25).

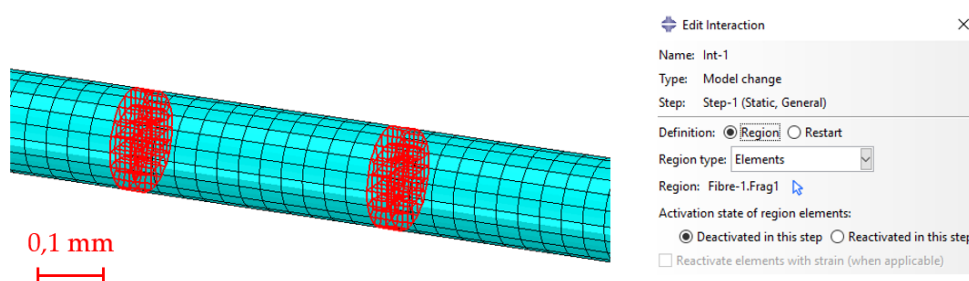


Figure III.25 : Exemple de désactivation de deux sections de fil pour la simulation de deux fragments de fil.

Le modèle par éléments finis décrit a été utilisé afin d'évaluer l'influence du nombre de fragments de fil sur les distributions de contraintes et de déformations dans une éprouvette monofilamentaire. La Figure III.26 présente le champ de contraintes axiales σ_{xx} dans le plan XY au centre de l'éprouvette pour quatre cas différents : sans rupture de fil (Figure III.26a), avec une rupture de fil (Figure III.26b), deux ruptures de fil (Figure III.26c) et trois ruptures de fil (Figure III.26d). Pour faciliter la comparaison, une échelle de couleur identique est utilisée pour les quatre cas. Les couleurs grises et noires correspondent aux valeurs hors échelle. À l'état initial, sans rupture de fil, la Figure III.26a montre une répartition homogène des contraintes dans la matrice le long du fil. Lorsqu'une rupture de fil survient (Figure III.26b), la valeur de σ_{xx} reste constante loin du fil, mais le champ de contraintes est modifié dans la matrice le long du fil. Une forte concentration de contraintes apparaît dans la matrice autour de la zone du fragment, tandis qu'il y a relâchement des contraintes le long du fil de part et d'autre de la rupture. En présence de deux ou trois ruptures de fil (Figures III.26c et III.26d), les mêmes phénomènes sont observés mais dans des proportions différentes. On retrouve les franges observées par photoélasticité en Figure II.18.

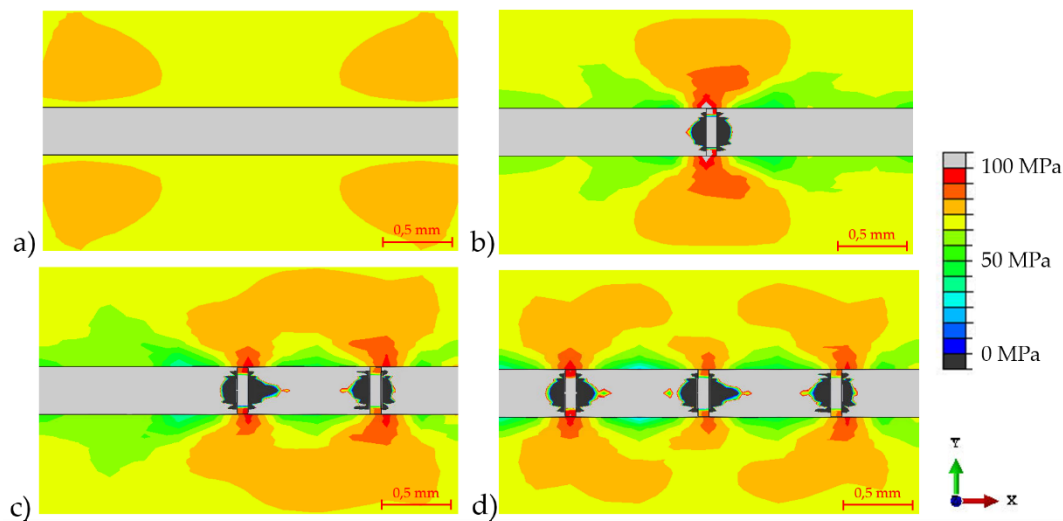


Figure III.26 : Résultats de la simulation du champ de contraintes (σ_{xx}) dans une section centrale de l'éprouvette monofilamentaire a) sans fragmentation, avec b) une, c) deux et d) trois fragmentations.

Les conséquences de l'évolution du champ de contraintes sur la distribution des déformations sont visibles sur la Figure III.27. Cette dernière montre les champs de déformations axiales (ϵ_{xx}), transverses (ϵ_{yy}) et de cisaillement (ϵ_{xy}) dans la section centrale de l'éprouvette monofilamentaire dans les cas où une ou trois fragmentations sont modélisées. La même échelle de couleur est utilisée pour une composante de déformation donnée. Le champ de déformation axiale présente une zone en forme de papillon autour de la fragmentation (Figure III.27a). En présence de trois ruptures de fil, ces zones, autour de chaque rupture, sont plus petites, mais le niveau de déformation atteint loin du fil augmente (Figure III.27b). De plus, à l'interface fil/matrice entre deux zones de fragmentation, le niveau de déformation est

proche de zéro, montrant l'état de relaxation dans ces zones. Comme attendu en raison de l'effet de Poisson, les valeurs de déformations transverses sont négatives et d'intensité moindre que celles de ϵ_{xx} (Figures III.27c et III.27d). Les champs de déformation de cisaillement (Figures III.27e et III.27f) mettent en évidence le fait que l'interface fil/matrice est soumise à une sollicitation de cisaillement pendant l'essai de fragmentation, notamment autour des ruptures de fil. On peut également observer que la concentration de déformation est située de manière préférentielle dans des directions à $\pm 45^\circ$.

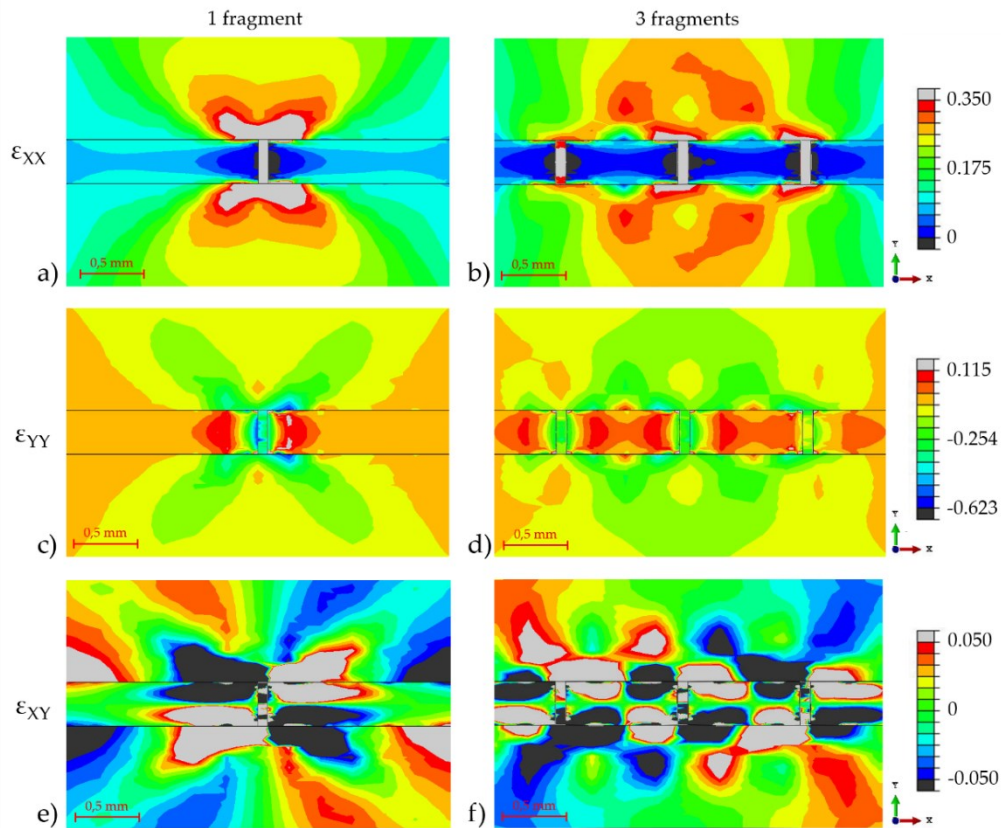


Figure III.27 : Résultats de la simulation des déformations a) et b) axiales, c) et d) transverses et e) et f) de cisaillement pour la modélisation de a), c) et e) une fragmentation et b), d) et f) trois fragmentations.

III.4.2.3 Essai de fragmentation et scénario d'endommagement

La première opération a été de scanner la zone utile avant le premier chargement. Cette première acquisition d'images microtomographiques sert d'état de référence pour l'ensemble des calculs de corrélation d'images numériques, en 2D (DIC) ou en 3D (DVC). Ensuite, la première partie de l'essai de fragmentation est réalisée. Lors de cette première montée en charge, il a été décidé de rester dans le domaine élastique linéaire du matériau. Une nouvelle acquisition microtomographique est ensuite effectuée. L'éprouvette est remontée sur la machine de traction et l'essai de fragmentation est poursuivi. Les interruptions suivantes sont

alors choisies en analysant en direct l'allure de la courbe force-déplacement de traverse. Lorsque des signes de fragmentation ou d'endommagement apparaissent (abaissement de la force appliquée, comportement plastique important en fin d'essai, etc.), l'essai de fragmentation est interrompu pour réaliser une nouvelle acquisition microtomographique. Ce protocole est répété jusqu'à atteindre la rupture de l'échantillon. La suite du protocole consiste à reconstruire les volumes scannés et à effectuer les mesures des champs de déformation par corrélation d'images numériques 2D (DIC) et 3D (DVC).

Le Tableau III.6 présente les contraintes axiales et les déformations résiduelles axiales atteintes ainsi que les apparitions d'endommagement associées à chaque étape de l'essai de fragmentation interrompu. L'étape 0 correspond à la microtomographie initiale et la rupture de l'échantillon a eu lieu lors de la 7^{ème} étape de l'essai de fragmentation interrompu. Les dispersions associées aux contraintes axiales représentent l'erreur due à la mesure de la section de l'éprouvette. Les déformations résiduelles axiales ont été déterminées par des mesures directes sur les images reconstruites par la méthode d'extensomètre virtuel (suivi de points caractéristiques) via le logiciel *ImageJ*. Les dispersions associées correspondent à l'écart-type sur cinq points de mesures par étape. Comme décrit précédemment, les niveaux de charge atteints à chaque étape ne sont pas prédéfinis à l'avance, mais déduit de l'allure de la courbe force-déplacement de traverse, d'où une variation des contraintes axiales non linéaire (Tableau III.6). Aussi, l'endommagement au sein de l'éprouvette se développant de plus en plus avec le nombre d'étape, les propriétés mécaniques de l'échantillon se dégradent au fur et à mesure de l'essai de fragmentation interrompu. La première valeur de déformation résiduelle axiale atteinte est proche de zéro (à la dispersion près), car la 1^{ère} interruption de l'essai de fragmentation a été effectuée dans le domaine élastique linéaire du matériau.

Tableau III.6 : Description des différentes étapes de l'essai de fragmentation interrompu : contrainte axiale appliquée, déformation résiduelle axiale atteinte et endommagements associés observés par microtomographie.

Étape	Contrainte axiale appliquée (MPa)	Déformation résiduelle axiale (%)	Ruptures de Fil (RFi), Fissures Matricielles (FMi), Fissures Matricielles de Surface (FMSi)
0	-	-	-
1	35,2 ± 0,7	-0,07 ± 0,07	-
2	46,2 ± 0,7	0,01 ± 0,11	RF1
3	46,5 ± 0,7	0,16 ± 0,09	RF2, RF3
4	45,1 ± 0,7	0,39 ± 0,12	-
5	42,3 ± 0,7	1,65 ± 0,63	FM1, FM2, FM3, FMS1, FMS2
6	40,5 ± 0,7	5,80 ± 0,40	FMS3, FMS4
7	24,8 ± 0,7	-	Rupture de l'éprouvette

Dans le Tableau III.6 sont répertoriées les différentes apparitions d'endommagement en fonction de l'étape de l'essai de fragmentation. En effet, comme on peut le voir sur la Figure III.28, différents endommagements se sont développés au cours de l'essai : des ruptures de fil (RFi), des fissures matricielles au voisinage du fil (FMi) ou des fissures matricielles provenant de la surface de l'échantillon (FMSi). La Figure III.29 montre des zooms sur les

images microtomographiques de ces zones endommagées. La Figure III.30 montre les résultats des segmentations 3D du fil de chanvre et des endommagements au voisinage du fil à l'étape 0 (Figure III.30a), 5 (Figure III.30b) et 6 (Figure III.30c) de l'essai de fragmentation. La zone segmentée est un parallélépipède rectangle de section carrée de 400 pixels de côté et d'une longueur égale à celle de la longueur utile. Ainsi, plus de 175 millions de voxels sont segmentés, représentant un temps de calcul d'environ 8 heures en utilisant le plugin *Weka Trainable Segmentation 3D* via le calculateur du *Méso-centre de calcul SPIN* de Poitou Charentes. Une version animée de l'étape 0 à l'étape 6 est disponible via le lien [\[h3\]](#) et le QR code en bas à droite de la Figure III.30. Quelques porosités et quelques zones avec un manque d'imprégnation dans le fil sont visibles avant le début de l'essai (Figure III.30a). À l'étape 2, une fragmentation, se situant non loin du centre de la zone utile de l'éprouvette monofilamentaire, est apparue (RF1). Viennent ensuite deux autres fragmentations situées de part et d'autre de la fragmentation centrale à l'étape 3 (RF2 et RF3). Lors de la 5^{ème} étape de l'essai de fragmentation, des fissures matricielles provenant des ruptures de fil (FM1, FM2 et FM3) ou de la surface de l'échantillon (FMS1 et FMS2) commencent à se développer. La Figure III.30b offre une visualisation 3D de l'état de développement des ruptures de fil RFi. Les différentes fissures matricielles (FMi et FMSi) continuent à se propager lors de la 6^{ème} étape. La fragmentation centrale (RF1) est celle qui se développe le plus tout au long de l'essai de fragmentation. Sur la Figure III.30c, le développement de l'endommagement autour du fragment associé à la rupture de fil RF1 est tellement important que la zone segmentée est trop petite pour observer complètement la fissure matricielle FM1. Finalement, la rupture de l'éprouvette intervient lors de la 7^{ème} étape, pour une contrainte appliquée d'environ 25 MPa seulement. La Figure III.31 schématise le scénario d'endommagement jusqu'à la rupture de l'échantillon.

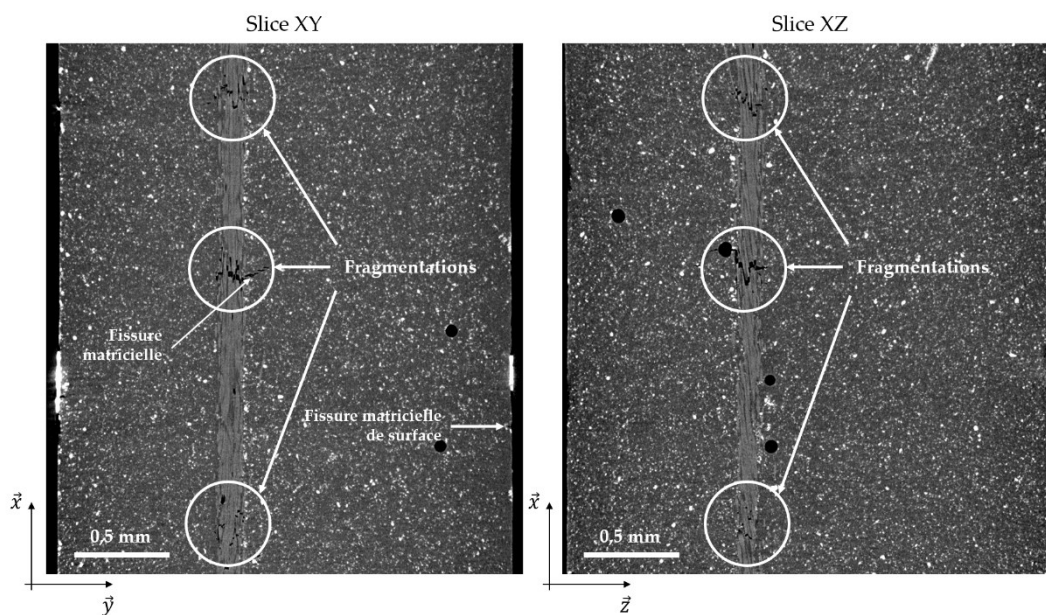


Figure III.28 : Exemples de slices de microtomographie dans les plans XY et XZ montrant les différents endommagements développés lors de l'essai de fragmentation à l'étape 5.

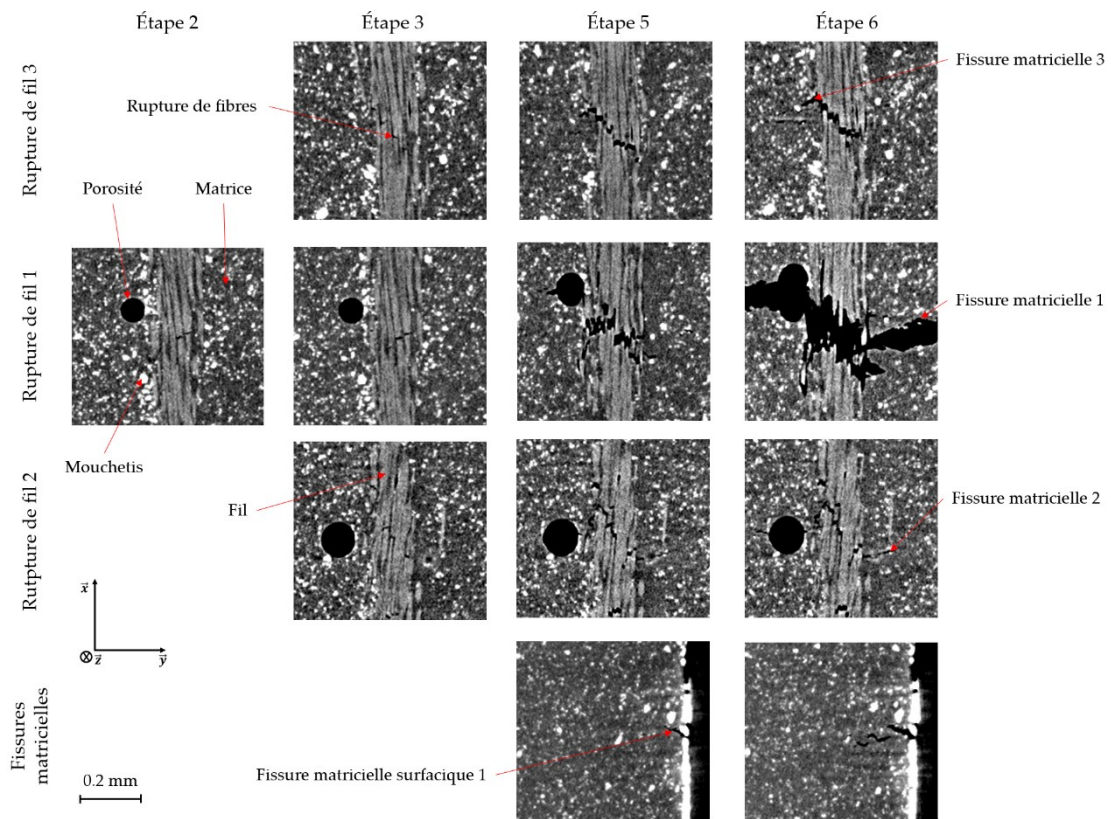


Figure III.29 : Images microtomographiques des endommagements apparaissant lors de l'essai de fragmentation.

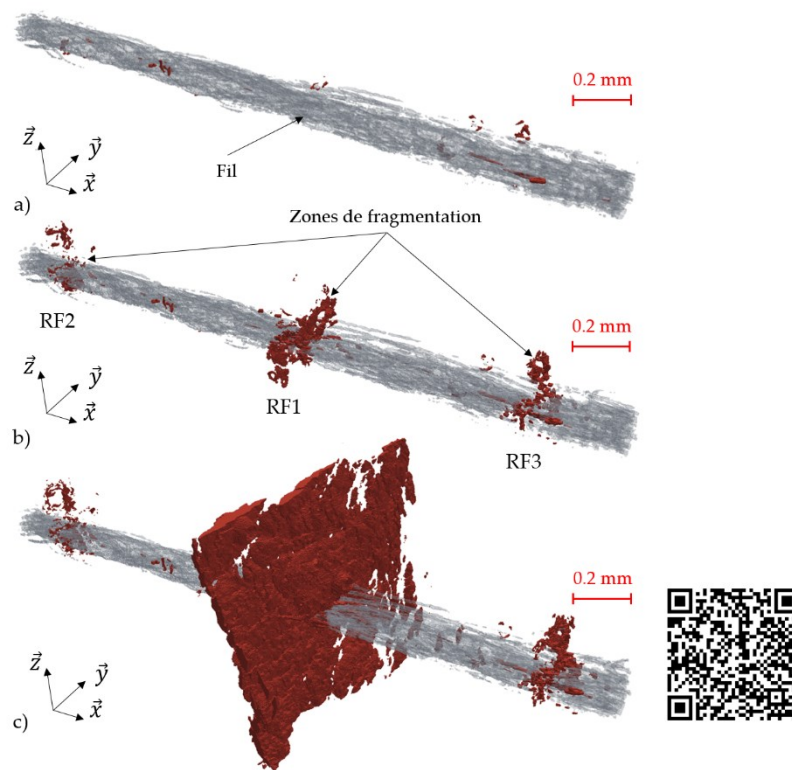


Figure III.30 : Segmentations 3D du fil de chanvre et des endommagements associés pour les étapes a) 0 (état initial), b) 5 et c) 6 de l'essai de fragmentation.

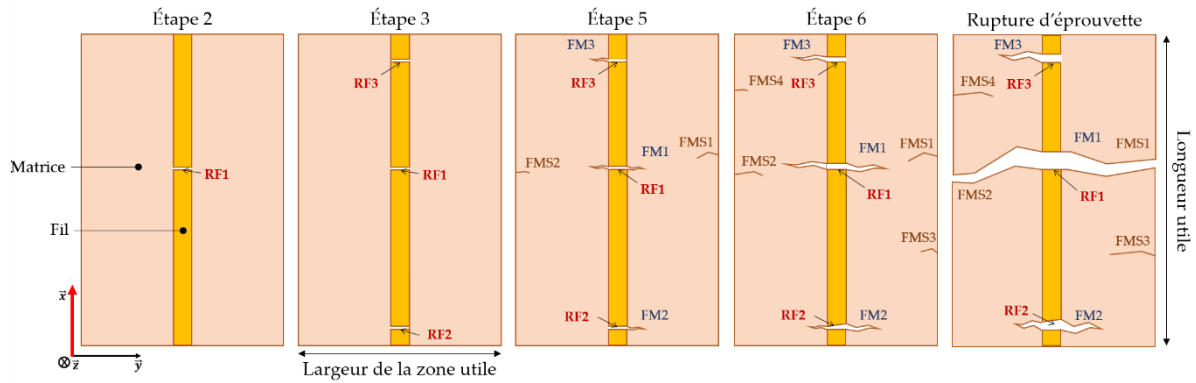


Figure III.31 : Schéma (échelle non respectée) du scénario d'endommagement pendant un essai de fragmentation (axe de traction : \vec{x}).

III.4.2.4 Mesure des champs de déformation par DIC et DVC

Les paramètres de mesure par corrélation d'images numériques sont ceux donnés en partie II.3.2. La Figure III.32 présente les champs de déformation axiale résiduelle mesurés par DIC et DVC pour trois étapes différentes (1, 5 et 6) au cours du test de fragmentation. Une version animée de l'étape 0 à l'étape 6 de l'essai de fragmentation est disponible via le lien [\[h4\]](#) pour les résultats 2D et via le lien [\[h5\]](#) pour les résultats 3D ainsi que via les QR codes à droite de la Figure III.32. La même barre d'échelle est utilisée pour toutes les visualisations. Les résultats de DIC sont présentés pour deux sections perpendiculaires dans les plans XY et XZ, traversant le fil. Concernant les résultats de DVC, le volume étudié est présenté en deux parties : la moitié arrière du volume est remplie de toutes les valeurs de déformation, tandis que la partie avant ne montre que les déformations supérieures à 3%. Cela permet de comparer les méthodes DIC et DVC sur le plan central et de mettre en évidence les zones endommagées dans le volume au premier plan. Les résultats montrent que les calculs DIC et DVC sont en concordance, validant ainsi l'algorithme 3D. Après la première interruption de l'essai de fragmentation, on peut observer que les valeurs de déformation résiduelle sont homogènes dans la matrice et plus élevées le long du fil. Cela est conforme aux attentes de la théorie des essais de fragmentation. Après la 5^{ème} étape de l'essai de fragmentation, les trois ruptures de fil sont identifiables par des zones de fortes déformations. Les résultats montrent une redistribution à $\pm 45^\circ$ des déformations dans la matrice. Cette redistribution de déformation (ou de contrainte) à $\pm 45^\circ$ est un phénomène classiquement rencontré lors de ce type d'essai ; on le retrouve dans le calcul par éléments finis (Figure III.27). De plus, il est possible de détecter la présence des porosités dans la matrice, jouant le rôle de concentrateurs de déformation. Après la 6^{ème} étape de l'essai de fragmentation, les fissures dans la matrice sont beaucoup plus développées et la redistribution des déformations résiduelles est accentuée.

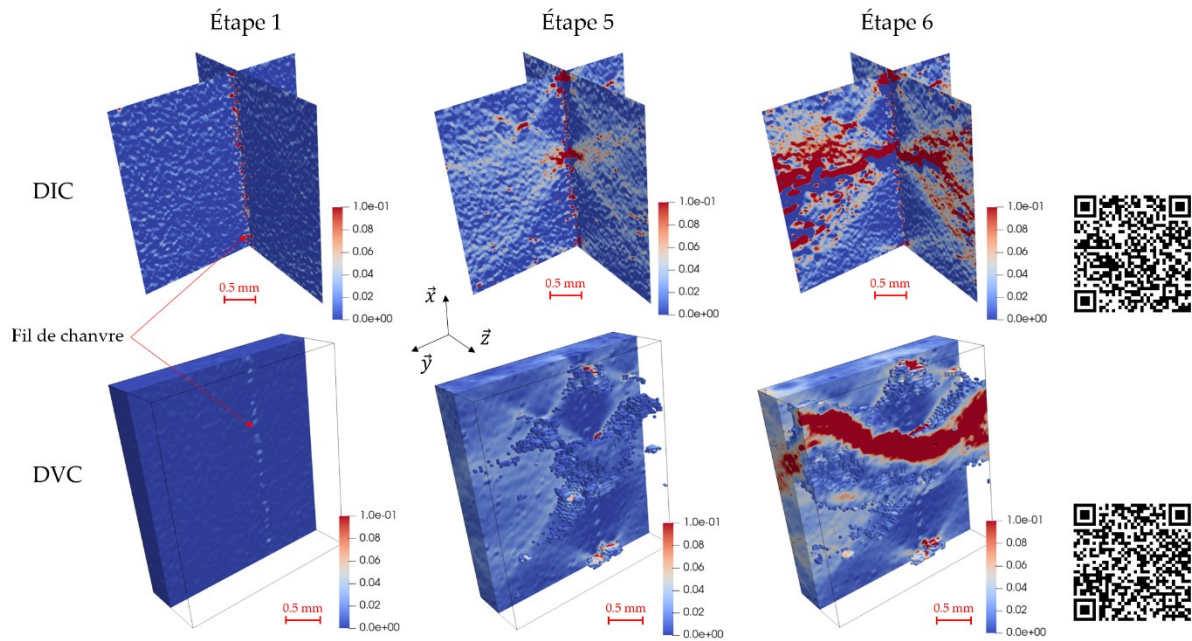


Figure III.32 : Champs de déformation résiduelle ϵ_{XX} mesurés par DIC et DVC pour les étapes 1, 5 et 6 de l'essai de fragmentation (en DVC, les valeurs de déformation supérieures à 3% sont représentées au premier plan).

La Figure III.33 montre les champs de déformation résiduelle axiale (ϵ_{XX}), transverse (ϵ_{YY}) et de cisaillement (ϵ_{XY}) calculés par DIC et DVC à partir des scans microtomographiques de l'étape 5 de l'essai de fragmentation. Comme dans la Figure III.32, deux coupes perpendiculaires sont sélectionnées pour les calculs DIC, et l'ensemble du volume étudié est présenté en deux parties pour les calculs DVC : seules les valeurs de déformation absolues les plus élevées sont représentées dans la partie avant. Pour une composante de déformation donnée, la même échelle de couleur est utilisée quelle que soit la technique employée (DIC et DVC). Les résultats de la Figure III.33 montrent que les calculs DIC sont plus bruités que ceux obtenus par DVC, en particulier pour les composantes ϵ_{YY} et ϵ_{XY} qui atteignent de plus petites valeurs absolues de déformation. Néanmoins, dans tous les cas, on observe une redistribution des déformations le long des directions $\pm 45^\circ$ dans la matrice, et les trois ruptures de fil concentrent toujours des valeurs de déformation résiduelle élevées. De plus, on peut voir que les déformations de cisaillement (ϵ_{XY}) sont concentrées le long du fil de chanvre, conformément à ce qui a été calculé par éléments finis (Figures III.27e et III.27f).

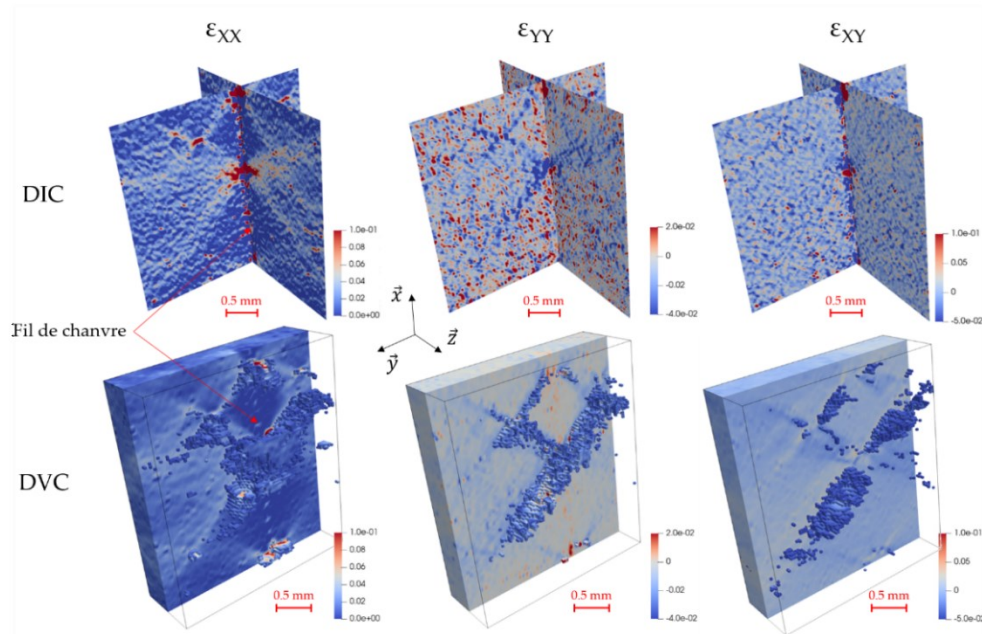


Figure III.33 : Champs de déformation résiduelle axiale (ϵ_{XX}), transverse (ϵ_{YY}) et de cisaillement (ϵ_{XY}) mesurés par DIC et DVC pour l'étape 5 de l'essai de fragmentation (en DVC, les valeurs de déformation suivantes sont représentées au premier plan : $|\epsilon_{XX}| > 3,0\%$, $|\epsilon_{YY}| > 1,5\%$, $|\epsilon_{XY}| > 1,5\%$).

La méthode de mesure DIC, en 2D, ne permet pas d'obtenir des corrélations exploitables dans les plans YZ. Cela est probablement dû au fait qu'il y a une grande variation d'un point à un autre des déplacements résiduels perpendiculaires à ces plans, c'est à dire dans la direction de traction X. On perd donc des grains du mouchetis d'une image à l'autre ce qui empêche la corrélation en 2D. La méthode de corrélation volumique, DVC, permet quant à elle de faire des mesures dans tous les plans. La Figure III.34 présente les champs de déformation axiale résiduelle calculés par DVC pour les étapes 4, 5 et 6 de l'essai de fragmentation. Les champs de déformation sont montrés pour trois slices YZ, situées à chaque rupture de fil, ainsi que dans deux plans XY et XZ traversant le fil. Cela permet de mieux comprendre comment se développent les endommagements durant l'essai de fragmentation. Une forme axisymétrique des fissures matricielles autour de chaque rupture de fil et une redistribution des déformations le long de lignes à $\pm 45^\circ$ dans la matrice sont ainsi observées.

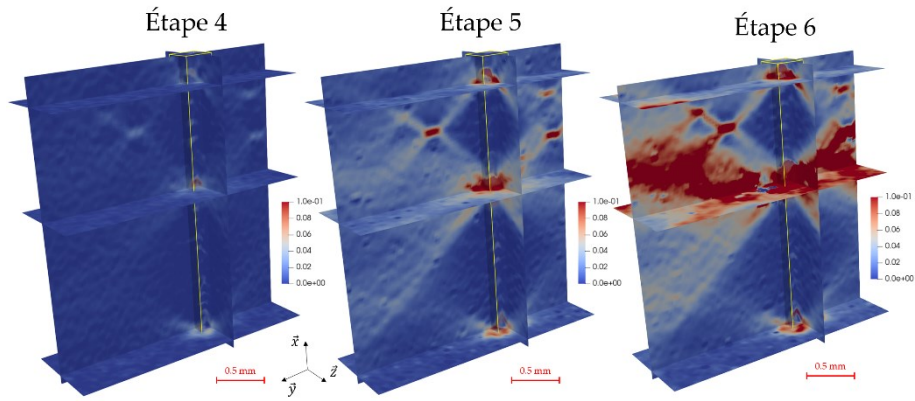


Figure III.34 : Champs de déformation résiduelle axiale (ϵ_{XX}) mesurés par DVC aux étapes 4, 5 et 6 de l'essai de fragmentation avec des vues dans tous les plans : XY, XZ et YZ.

Les mesures DIC et DVC permettent également d'analyser l'évolution des valeurs de déformation le long d'une trajectoire donnée. Par exemple, la Figure III.35 montre la comparaison des déformations résiduelles axiales et de cisaillement mesurées par DIC et DVC le long du fil de chanvre et à travers la rupture de fil centrale RF1 lors de la 6^{ème} étape de l'essai de fragmentation. La Figure III.35 montre à nouveau que les résultats obtenus par DIC sont plus bruités que ceux obtenus par DVC. Cela peut être dû au fait que les calculs DIC sont effectués dans un plan 2D et avec des fenêtres plus petites. Par conséquent, certaines zones peuvent être perdues si elles ont changé de plan du fait de déformations trop importantes, diminuant ainsi la qualité de la corrélation. En revanche, les calculs DVC, qui sont effectués sur des sous-volumes, permettent de suivre le mouchetis plus facilement, dans les trois directions. La Figure III.35 montre que les ruptures de fil jouent également le rôle de concentrateurs de déformation.

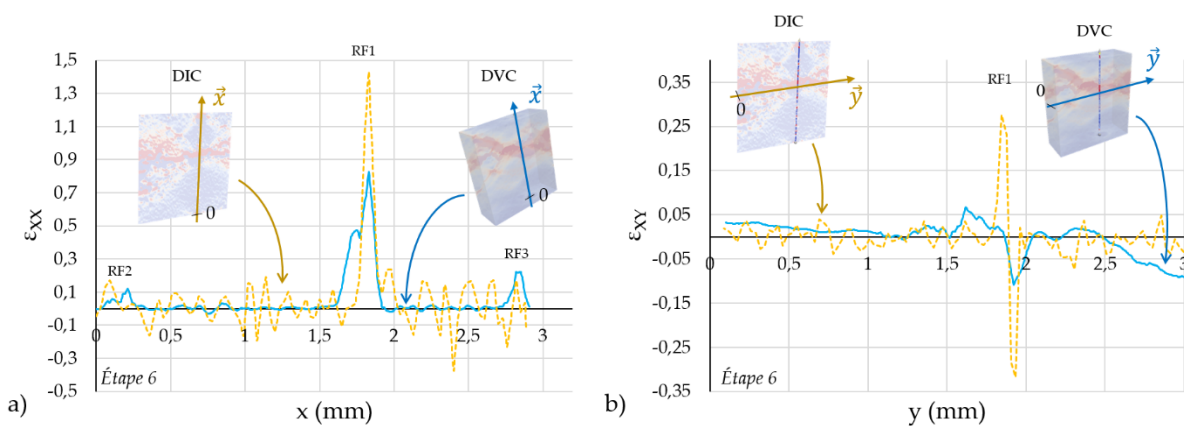


Figure III.35 : Comparaison des déformations résiduelles a) axiales (ϵ_{XX}) le long du fil de chanvre (axe \vec{x}) et b) de cisaillement (ϵ_{XY}) à travers la rupture de fil RF1 (axe \vec{y}) mesurées par DIC et DVC à l'étape 6 de l'essai de fragmentation interrompu.

Dans la Figure III.36, l'évolution des valeurs ϵ_{xx} le long des axes \vec{x} et \vec{y} mesurées par DVC pour les étapes 3 à 6 de l'essai de fragmentation est présentée. Les résultats montrent la façon dont les valeurs de déformation augmentent progressivement durant l'essai. Sur la Figure III.36a, l'évolution des déformations axiales à chacune des trois ruptures de fil est clairement visible, avec un développement plus important au niveau de la fragmentation centrale RF1. Il convient de noter que les valeurs de déformation très élevées atteintes au niveau de la fragmentation sont dues à l'écartement des deux extrémités du matériau et ne sont pas de réelles déformations du matériau. La Figure III.36b permet de mettre en évidence comment l'ouverture de la fissure matricielle (FM1) autour de la fragmentation RF1 modifie le champ de déformation mesuré. Ces mesures par DVC basées sur des acquisitions microtomographiques permettent ainsi d'analyser la redistribution des déformations et l'évolution des endommagements pendant l'essai de fragmentation de l'éprouvette monofilamentaire chanvre/Epolam.

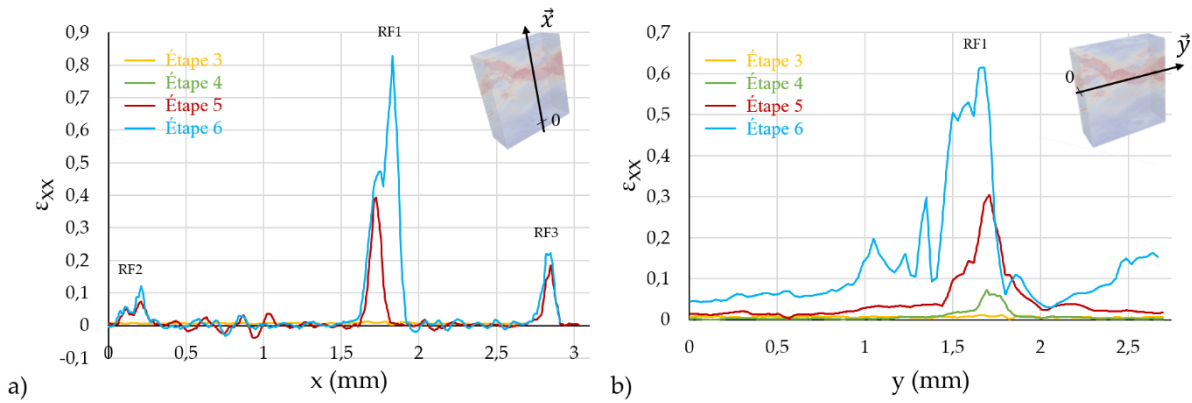


Figure III.36 : Évolution des déformations résiduelles axiales (ϵ_{xx}) mesurées par DVC aux étapes 3 à 6 de l'essai de fragmentation : a) le long du fil de chanvre (axe \vec{x}) et b) à travers la rupture de fil RF1 (axe \vec{y}).

Bilan sur la caractérisation mécanique multi-échelle des matériaux non vieillis

Dans ce chapitre, l'ensemble des constituants des composites de l'étude a été caractérisé mécaniquement dans un état non vieilli. Les fils de chanvre testés sont ceux issus des tissus utilisés pour la fabrication des éprouvettes composites. Les résultats mécaniques obtenus montrent une grande dispersion, classique pour ce type de matériau. La résine Epolam présente un excellent comportement en traction mais les résultats montrent aussi que les résines Elium et Greenpoxy constituent une bonne alternative à l'utilisation de ce polymère thermodur pétro-sourcé.

Des essais de traction ont également été réalisés sur tous les composites tissés, orientés à $0^\circ/90^\circ$ ou $\pm 45^\circ$. Les résultats confirment la supériorité des composites verre/Epolam. Ils montrent aussi que le chanvre/Epolam et le chanvre/Greenpoxy ont des comportements très similaires, le chanvre/Elium étant en retrait. Ce résultat est à mettre en lien avec l'évolution des modules sécants, déterminée grâce aux essais à chargements répétés progressifs, qui montre pour le chanvre/Elium une décroissance plus précoce et plus rapide. De plus, il a été vérifié sur des éprouvettes témoins, conservées pendant la thèse à température et humidité ambiantes, que les propriétés de traction restaient inchangées après ce stockage pendant environ deux ans.

Les endommagements créés par les essais mécaniques ont été analysés par plusieurs méthodes : un suivi par émission acoustique, des observations par MEB et des acquisitions microtomographiques. Les résultats obtenus par émission acoustique ont permis de confirmer, via la comparaison d'un seuil d'endommagement, la précocité du développement des endommagements dans les composites chanvre/Elium. Une comparaison a également été faite sur les parts énergétiques des trois mécanismes d'endommagement qui sont, par ordre d'émission d'énergie croissante : la fissuration matricielle, la décohésion à l'interface fil/matrice et les ruptures de fibres. Les résultats montrent que dans les composites à renfort de chanvre d'orientation $\pm 45^\circ$ l'interface fil/matrice est davantage sollicitée que dans ceux orientés à $0^\circ/90^\circ$. De plus, les composites verre/Epolam à $\pm 45^\circ$ ont un comportement particulier : la part d'énergie associée aux décohésions fil/matrice est la plus importante. Ce résultat concorde avec un allongement à rupture très supérieur à celui des autres composites.

Les images MEB ont montré la bonne imprégnation de la résine dans les renforts. Elles ont également montré que les décohésions à l'interface fil/matrice sont plus importantes dans les composites verre/Epolam à $\pm 45^\circ$. Les acquisitions microtomographiques ont permis de quantifier des taux de porosité avant sollicitation mécanique inférieurs à 1%. Après essai mécanique, les endommagements sont peu nombreux et surtout localisés près de la zone de rupture. Ce sont essentiellement des décohésions entre les fils et la matrice, ainsi que quelques fissures matricielles.

Enfin, une analyse de l'interface fil/matrice a été effectuée pour les composites à renfort de chanvre et à matrice thermosure. Dans un premier temps, des essais de fragmentation sur des éprouvettes monofilamentaires chanvre/Epilam et chanvre/Greenpoxy ont été réalisés dans le but de quantifier la qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice. Cependant, le calcul de l'IFSS nécessite des hypothèses fortes non vérifiables. La comparaison des longueurs de décohésion interfaciale au niveau de chaque fragmentation paraît donc plus fiable. Cette comparaison montre que les deux résines ont un comportement à l'interface très voisin, ce qui concorde avec les résultats obtenus sur les composites tissés. Afin de comprendre l'évolution des champs de déformation au sein de ce type d'éprouvette, une nouvelle expérience a été développée : un essai de fragmentation interrompu par des acquisitions d'images microtomographiques a été réalisé, permettant la mesure des champs de déformation 3D par corrélation d'images numériques. Les résultats ont montré que chaque rupture de fil modifie la répartition des déformations dans l'éprouvette monofilamentaire, redistribuant les zones de surdéformation suivant les directions de cisaillement à $\pm 45^\circ$.

Ce chapitre donne donc les bases de l'ensemble des comparaisons qui suivront, pour lesquelles des matériaux vieillis seront étudiés.



IV. Préalable à la fatigue hydrique : étude du vieillissement hydrothermique

Ce chapitre est consacré à la détermination des paramètres de vieillissement par fatigue hydrique. En effet, pour atteindre la saturation en eau à chaque cycle de fatigue tout en conservant une durée de vieillissement raisonnable et sans modifier les matériaux étudiés, il est nécessaire de choisir une température d'immersion adaptée. Des éprouvettes de composites tissés sont donc immergées jusqu'à saturation dans de l'eau à différentes températures. Pour chaque température, le comportement à l'absorption, les propriétés mécaniques et les mécanismes d'endommagement seront analysés. Les résultats obtenus seront comparés à ceux correspondant aux éprouvettes stockées à température et humidité ambiantes. Finalement, les paramètres de fatigue hydrique choisis (temps d'immersion et de séchage, températures, etc.) seront présentés en fin de chapitre.

IV.1 Influence de la température de l'eau sur le comportement à l'absorption des composites

La Figure IV.1 montre les différents conditionnements qui seront étudiés dans ce chapitre (encadré jaune), les éprouvettes stockées à l'ambiante ayant été analysées dans le chapitre III (encadré vert). Afin d'accélérer le vieillissement hydrique, deux températures d'immersion dans l'eau ont été testées, 60°C et 70°C, et comparées à une immersion à température ambiante. L'immersion à température ambiante ($20 \pm 1,5^\circ\text{C}$) a été étudiée afin d'observer les effets de l'eau découplés des effets de la température. La température d'immersion maximale étudiée ($70 \pm 1,5^\circ\text{C}$) a été choisie de sorte à être au plus proche des températures de transition vitreuse des résines utilisées (voisines de 80°C , Tableau II.2) sans les atteindre. Enfin, une température intermédiaire de $60 \pm 1,5^\circ\text{C}$ a également été testée, permettant a priori une cinétique d'absorption rapide tout en s'éloignant de la température de transition vitreuse.

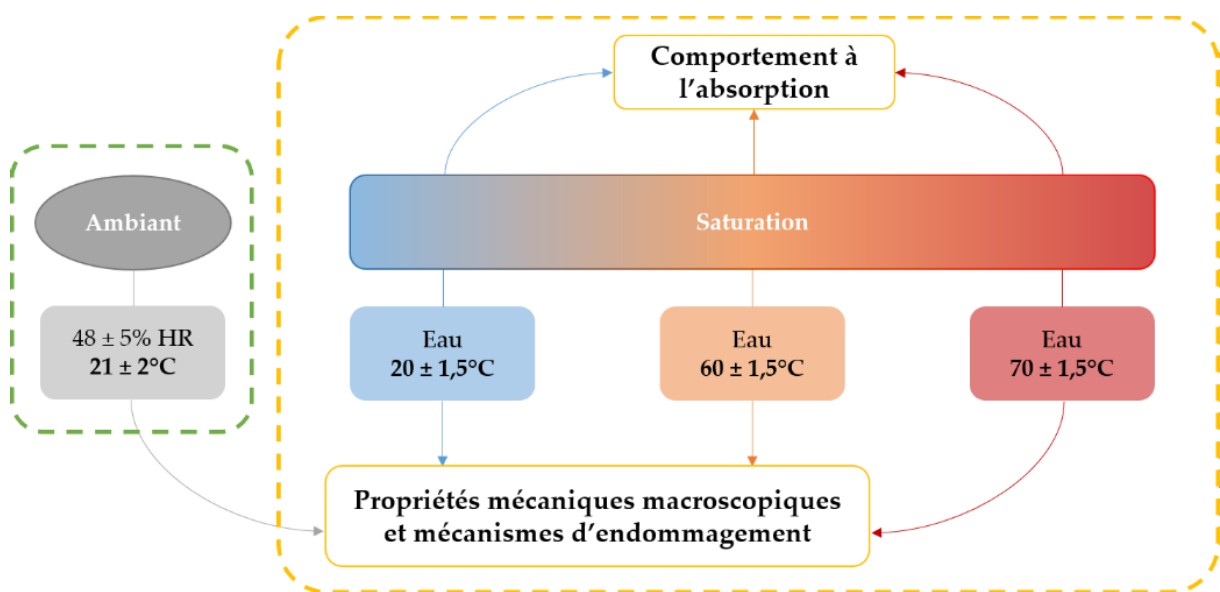


Figure IV.1 : Schématisation des différents conditionnements étudiés et caractérisations associées.

IV.1.1 Courbes d'absorption en eau

Des éprouvettes de chaque composite tissé ont été immergées dans l'eau aux différentes températures étudiées et leur masse a été relevée tout au long du vieillissement jusqu'à la saturation. La Figure IV.2 montre les évolutions de la variation relative de masse M_t , normée par le taux volumique de fibres v_f , en fonction de la racine carrée du temps divisée par l'épaisseur initiale de chaque échantillon avant immersion e_0 . Les courbes obtenues sont présentées pour les composites à renfort de chanvre et de verre pour les températures de 20°C

(Figure IV.2a) et 60°C (Figure IV.2b), et pour les composites à renfort de chanvre uniquement pour 70°C (Figure IV.2c). Sur la Figure IV.2, l'échelle des ordonnées est la même quelle que soit la température d'immersion et l'échelle des abscisses a été adaptée pour les températures d'immersion élevées (Figure IV.2b et IV.2c). Sur chaque graphique, les courbes tracées sont représentatives de l'ensemble des suivis gravimétriques réalisés. En effet, les résultats ont montré que l'orientation des fibres ($\pm 45^\circ$ ou $0^\circ/90^\circ$) ne joue pas sur le comportement à l'absorption. Superposées aux points expérimentaux, se trouvent les courbes issues des équations du modèle de Fick unidirectionnel (équations I.8 et I.9). Les résultats obtenus montrent que, quelles que soient la matrice, la nature du renfort et la température d'immersion, le modèle de Fick unidirectionnel décrit correctement le comportement à l'absorption des composites étudiés (Figure IV.2). Les valeurs des taux d'absorption à saturation pour l'ensemble des composites et des conditionnements sont regroupées dans le Tableau IV.1.

Tableau IV.1 : Taux d'absorption à saturation des matériaux composites étudiés M_∞ en fonction de la température d'immersion pour les composites étudiés.

Température d'immersion	Taux d'absorption à saturation M_∞ (%)			
	Chanvre/Epolam	Chanvre/Greenpoxy	Chanvre/Elium	Verre/Epolam
20°C	7,7 ± 0,5	8,4 ± 0,4	5,4 ± 0,2	1,5 ± 0,1
60°C	8,3 ± 0,8	8,5 ± 1,0	7,4 ± 0,1	2,3 ± 0,1
70°C	7,9 ± 0,7	7,9 ± 0,9	9,8 ± 0,2	-

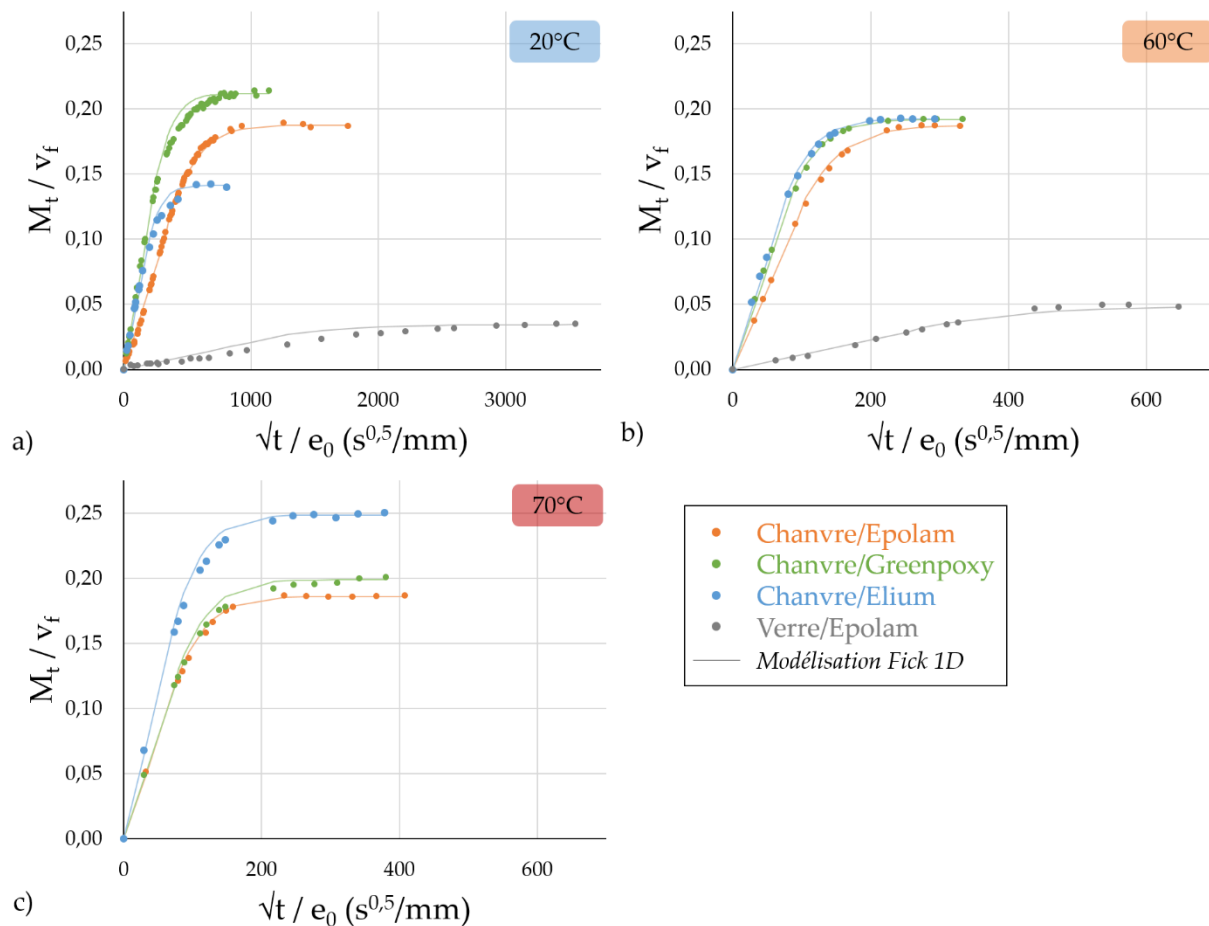


Figure IV.2 : Courbes expérimentales M_t/v_f en fonction de la racine carrée du temps divisée par l'épaisseur de chaque échantillon et modèle de Fick 1D associé pour les composites immergés dans l'eau à a) 20°C, b) 60°C et c) 70°C.

À température ambiante (Figure IV.2a), les composites ont des comportements à l'absorption en eau différents. Les composites verre/Epolam, constitués de fibres synthétiques, absorbent peu d'eau (taux d'absorption à saturation non normé par v_f d'environ 1,6%). En revanche, les composites à renfort de chanvre atteignent des variations relatives de masse à saturation de l'ordre de 8% pour les éprouvettes chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy, et de 5% pour les composites chanvre/Elium (Tableau IV.1). On constate donc que la nature de la résine, en plus de celle des renforts, a une influence importante sur les taux d'absorption en eau à saturation. Lorsque la température augmente, les composites à renfort de chanvre et résine époxy (Epolam ou Greenpoxy) ont des taux d'absorption à saturation similaires à ceux mesurés à température ambiante (Tableau IV.1). Les composites chanvre/Elium ont un comportement différent : plus la température de l'eau augmente, plus le taux d'absorption à saturation des échantillons augmente. Ainsi, ce taux passe d'environ 5,4% à température ambiante, à 7,5% lorsque la température de l'eau est de 60°C et à près de 10% lorsque l'eau est portée à 70°C (Tableau IV.1). Ces résultats sont cohérents avec la littérature, notamment avec les travaux de Bel Haj Frej *et al.* [113] qui ont obtenu la même tendance pour de l'Elium pur et pour des composites carbone/Elium entre 40°C et 70°C.

IV.1.2 Cinétique d'absorption en eau

Le modèle de Fick permet également de déterminer le coefficient de diffusion de l'eau tel que défini par l'équation I.10, à partir de l'épaisseur initiale e_0 , de la pente k de la courbe $M_t - \sqrt{t}$ et de l'absorption à saturation M_∞ associées à chaque échantillon. La Figure IV.3 présente, pour l'ensemble des composites et des températures d'immersion étudiés, les coefficients de diffusion de Fick obtenus.

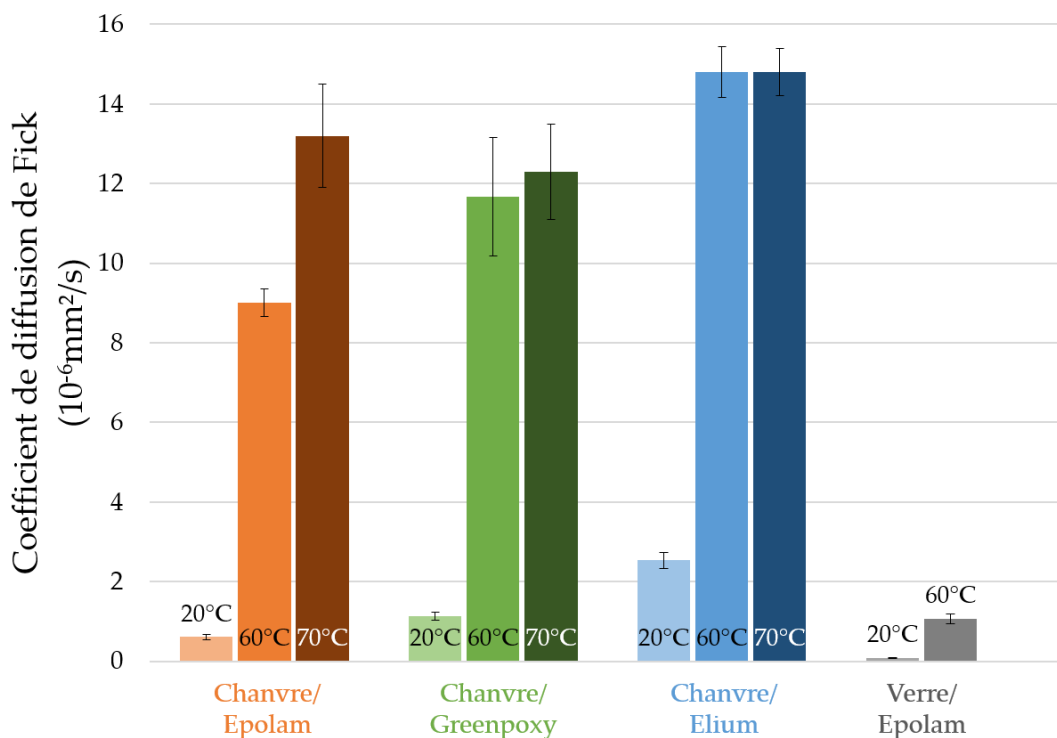


Figure IV.3 : Coefficients de diffusion de Fick déterminés lors de l'immersion dans l'eau de l'ensemble des composites étudiés pour différentes températures d'immersion.

À température ambiante, les composites à renfort de verre ont le coefficient de diffusion le plus faible ($0,10 \pm 0,01 \cdot 10^{-6} \text{ mm}^2/\text{s}$). Viennent ensuite les composites chanvre/Epolam, qui ont un coefficient de diffusion de Fick égal à $0,61 \pm 0,06 \cdot 10^{-6} \text{ mm}^2/\text{s}$. Bien que les résines Epolam et Greenpoxy soient toutes les deux de la famille des époxy, la diffusion de l'eau à température ambiante dans les composites chanvre/Greenpoxy est plus importante : le coefficient de diffusion de Fick vaut $1,13 \pm 0,10 \cdot 10^{-6} \text{ mm}^2/\text{s}$. Enfin, la valeur du coefficient de diffusion de Fick pour les composites chanvre/Elium est la plus élevée et est égale à $2,54 \pm 0,20 \cdot 10^{-6} \text{ mm}^2/\text{s}$. Pour une température d'immersion dans l'eau de 60°C , une forte augmentation des coefficients de diffusion de Fick est observée et la hiérarchie entre les différents composites est respectée. Les matériaux qui voient leur coefficient de diffusion augmenter le plus sont les chanvre/Epolam ($\times 15$) et les verre/Epolam ($\times 13$). Les coefficients de diffusion des composites

chanvre/Greenpoxy et chanvre/Elium sont quant à eux multipliés par, respectivement, 10 et 6. Concernant les composites à renfort de chanvre, pour une température d'immersion de 70°C, seuls les composites chanvre/Epolam poursuivent leur augmentation du coefficient de diffusion, les composites chanvre/Greenpoxy et chanvre/Elium ayant tendance à se stabiliser (Figure IV.3).

Ces suivis gravimétriques permettent également de déterminer la durée d'immersion nécessaire pour atteindre la saturation. Afin de quantifier et comparer ces durées pour les différents matériaux et les différents conditionnements, il a été choisi de déterminer les temps nécessaires pour atteindre 95% de M_{∞} , calculés à partir des modèles de Fick et notés $t_{95\%}$. La Figure IV.4 présente sous la forme d'histogrammes les valeurs de $t_{95\%}$ pour les composites de l'étude aux trois températures d'immersion étudiées.

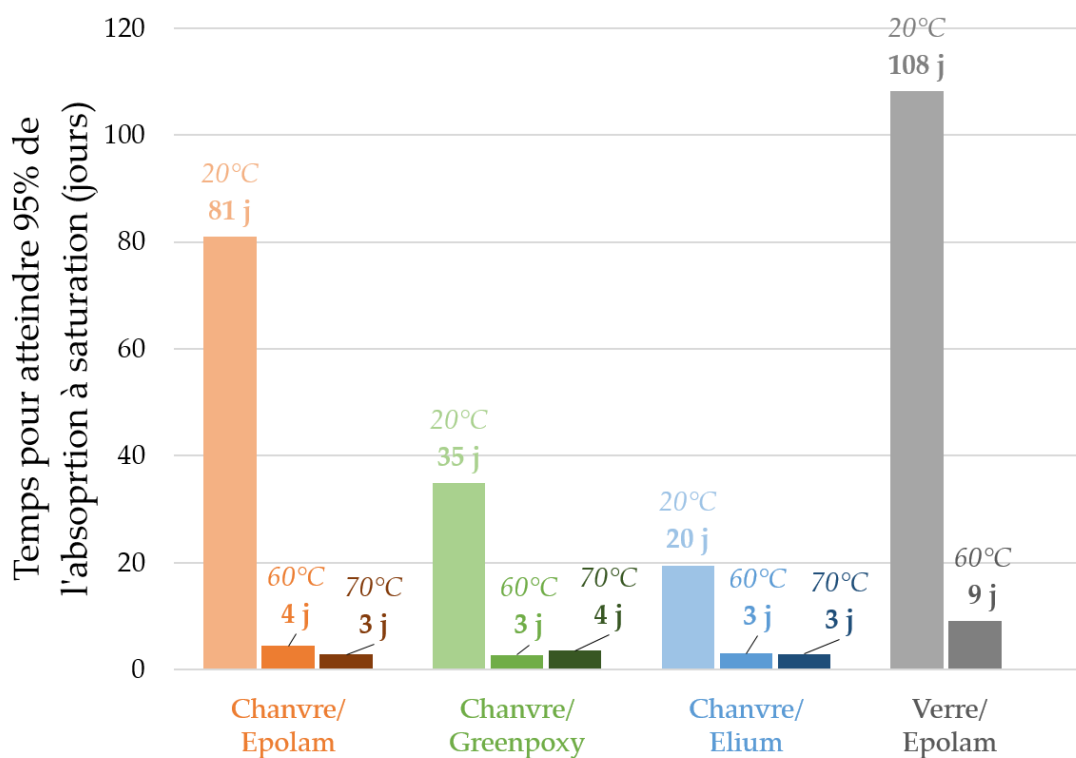


Figure IV.4 : Temps pour atteindre 95% de l'absorption à saturation (en jours) déterminés lors de l'immersion dans l'eau de l'ensemble des composites étudiés pour différentes températures d'immersion.

Les tendances observées sont cohérentes avec les évolutions des coefficients de diffusion. À température ambiante, le temps nécessaire pour atteindre 95% de l'absorption à saturation dans le cas des composites verre/Epolam est le plus important (près de 110 jours). Lorsque les renforts de verre sont remplacés par des fibres de chanvre, le temps $t_{95\%}$ est diminué d'une trentaine de jours (chanvre/Epolam). Les composites chanvre/Greenpoxy quant à eux atteignent 95% de la saturation en eau dès 35 jours d'immersion dans de l'eau à température ambiante. Enfin, les composites chanvre/Elium, qui admettent un taux d'absorption à

saturation inférieur à celui des autres composites à renfort de chanvre (Tableau IV.1), ont besoin de seulement 20 jours pour atteindre 95% de M_{∞} . Lorsque la température de l'eau est augmentée, les temps $t_{95\%}$ sont significativement réduits : entre 3 et 4 jours sont suffisants pour atteindre 95% de la saturation en eau pour les composites à renfort de chanvre (quelle que soit la matrice) et moins d'une dizaine de jours sont nécessaires aux composites verre/Epilam pour approcher la saturation en eau (Figure IV.4).

Ces résultats permettent d'écarter l'hypothèse d'une immersion à température ambiante dans le cadre d'un vieillissement par fatigue hydrique avec un nombre élevé de cycles.

IV.2 Effet du vieillissement hydrothermique sur le comportement mécanique des composites

Afin de caractériser le comportement mécanique des composites saturés en eau, les essais de traction ont été réalisés directement en sortie d'immersion, quelle que soit la température de l'eau. La section de chaque éprouvette a été mesurée juste avant les essais mécaniques, permettant ainsi de prendre en compte les éventuelles variations de section. Les essais mécaniques et leur mise en place ont une durée suffisamment courte pour supposer que les éprouvettes restent dans leur état saturé en eau tout au long de la sollicitation mécanique.

IV.2.1 Comportement en traction

Les courbes contrainte-déformation obtenues lors des essais de traction sur les éprouvettes saturées en eau à 60°C et 70°C sont présentées Figure IV.5 : Figure IV.5a pour les composites à renfort de chanvre orienté à 0°/90° et Figure IV.5c pour ceux à ±45°. Les courbes pour les composites verre/Epilam 0°/90° et ±45° saturés en eau à 60°C ont été superposées à celles des composites à renfort de chanvre en Figures IV.5b et IV.5d. Il faut noter que tous les composites ont été testés après une immersion à 60°C mais seuls trois ont été testés après saturation à 70°C : chanvre/Epilam 0°/90°, chanvre/Greenpoxy ±45° et chanvre/Elium ±45°.

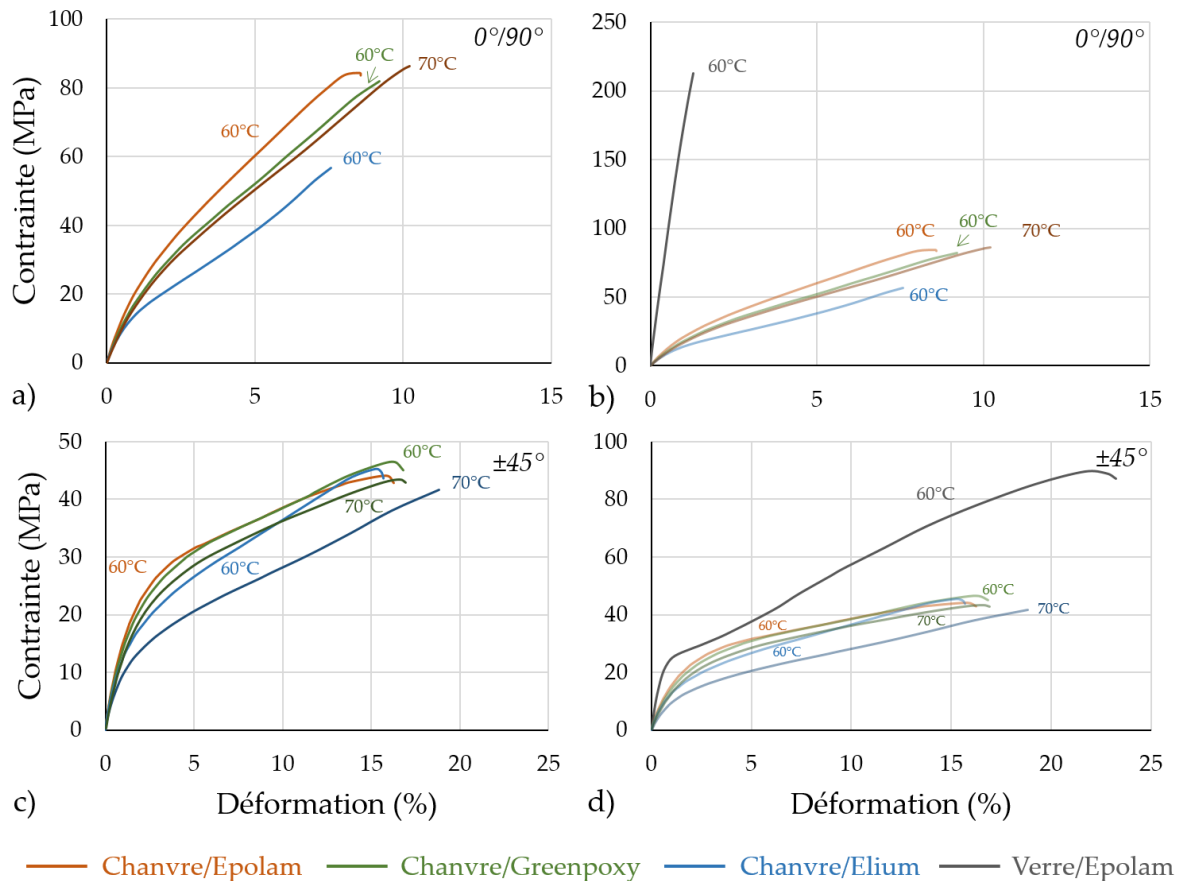


Figure IV.5 : Courbes de traction des composites tissés saturés en eau à 60°C et 70°C d'orientation 0°/90° et ±45° : a) et c) à renfort de chanvre et b) et d) à renfort de chanvre et de verre.

En termes de performances mécaniques, la hiérarchie entre les composites à renfort de chanvre est la même que pour ceux non vieillis (Figure III.5). En effet, les composites à matrice thermodure (Epolam et Greenpoxy) ont un comportement mécanique similaire entre eux alors que les composites chanvre/Elium admettent des propriétés mécaniques inférieures. Les composites à renfort de verre orienté à 0°/90° saturés en eau à 60°C admettent toujours un comportement élastique linéaire. De même qu'à température ambiante, la courbe des composites verre/Epolam ±45° est nettement au-dessus de celles des composites ±45° à renfort de chanvre. Pour les composites qui ont été testés aux deux températures, on observe que l'augmentation de la température jusqu'à 70°C provoque un abaissement des propriétés mécaniques par rapport à la saturation à 60°C.

IV.2.2 Propriétés mécaniques macroscopiques et comparaison avec le stockage ambiant

Les Figures IV.6, IV.7 et IV.8 présentent sous forme d'histogrammes les différentes propriétés mécaniques (respectivement, modules d'Young, contrainte maximale et déformation à rupture) extraites des courbes contrainte-déformation issues des essais mécaniques sur l'ensemble des composites non vieillis (Tableau III.3) et ceux saturés en eau à 20°C, 60°C et 70°C.

La Figure IV.6 montre que, quel que soit le matériau et quelle que soit l'orientation, le module d'Young diminue après saturation en eau par rapport au stockage à l'ambiante, et cette diminution est d'autant plus importante que la température de l'eau est élevée. Lorsque les matériaux composites à renfort de chanvre orienté à 0°/90° sont saturés en eau à température ambiante (20°C), le module d'Young chute, par rapport au stockage ambiant, de près de 50% pour les composites chanvre/Epolam, d'environ 60% pour les composites chanvre/Greenpoxy et de seulement 35% pour les composites chanvre/Elium (Figure IV.6a). Lorsque les biocomposites sont saturés en eau à 60°C, le module d'Young décroît pour atteindre une perte par rapport à l'état non vieilli de près de 65%, quelle que soit la nature de la matrice polymère. Pour une température de l'eau de 70°C, les composites chanvre/Epolam 0°/90° perdent encore en module d'Young (-71% par rapport aux composites non-vieillis). En revanche, les composites verre/Epolam 0°/90° voient leur module d'Young diminuer progressivement avec l'augmentation de la température d'immersion pour perdre seulement 18% après une immersion en eau à 60°C jusqu'à saturation. Cette diminution peut s'expliquer par un phénomène de plastification de la résine époxy lorsque celle-ci est saturée en eau [65], puisque les renforts de verre sont inertes et n'absorbent pas d'eau. Les composites à renfort de chanvre saturés en eau voient également leur matrice, thermodure ou thermoplastique, se plastifier. À cela peut s'ajouter une probable dégradation d'une part de l'interface fil/matrice et d'autre part du renfort de chanvre. En effet, la saturation en eau des composites à renfort naturel a comme effets la dissolution de certains composants de ces fibres au sein de la matrice ainsi que la création de microfissures matricielles du fait de la différence des coefficients de dilatation thermique et de gonflements hygroscopiques [61]. Ainsi, ces pré-endommagements, physiques ou chimiques, apparaissant pendant l'immersion dans l'eau, entraînent une perte des propriétés mécaniques dès le début des essais mécaniques, se traduisant par une perte en module d'Young.

Le module d'Young des composites dont les renforts sont orientés à $\pm 45^\circ$ (Figure IV.6b) sont également fortement impactés par la saturation en eau à 20°C, 60°C ou 70°C. Les pertes sont plus ou moins progressives en fonction du matériau considéré. En effet, les composites chanvre/Greenpoxy à $\pm 45^\circ$ admettent, comme pour l'orientation à 0°/90°, la plus forte perte en module d'Young dès la saturation en eau à température ambiante : -60%. Pour des températures d'immersion de 60°C, le module d'Young de l'ensemble des biocomposites à

$\pm 45^\circ$ admet une baisse allant de 60% pour les échantillons à matrice Elium à 65% pour les matériaux à matrice thermodore. Les pertes de rigidité s'accroissent encore lorsque la température d'immersion passe à 70°C . Concernant les composites verre/Epolam à $\pm 45^\circ$, la perte de rigidité par rapport au stockage ambiant est de 39% pour une immersion à l'ambiante et atteint 62% après saturation en eau à 60°C , c'est-à-dire qu'elle est, après immersion à 60°C , du même ordre de grandeur que celle des composites à renfort de chanvre. De même que pour les composites à renfort orienté à $0^\circ/90^\circ$, ces pertes de rigidité s'expliquent en partie par le fait que les matrices et le renfort de chanvre sont dégradés par la saturation en eau. Cependant, pour les composites à $\pm 45^\circ$, la dégradation à l'interface fil/matrice joue un rôle beaucoup plus important sur les pertes de rigidité, et ce, quelle que soit la nature des renforts. En effet, dans les échantillons dont les renforts sont orientés à $\pm 45^\circ$, l'interface est davantage sollicitée par cisaillement. Or, quel que soit le renfort considéré, les différences des coefficients de gonflement hygroscopique et de dilatation thermique peuvent entraîner une fragilisation de l'interface fil/matrice. Dans le cas des composites à renfort de chanvre, la fibre naturelle est bien plus hydrophile que la matrice polymère alors que dans le cas des échantillons verre/Epolam, c'est la matrice polymère qui est plus hydrophile que les renforts de verre.

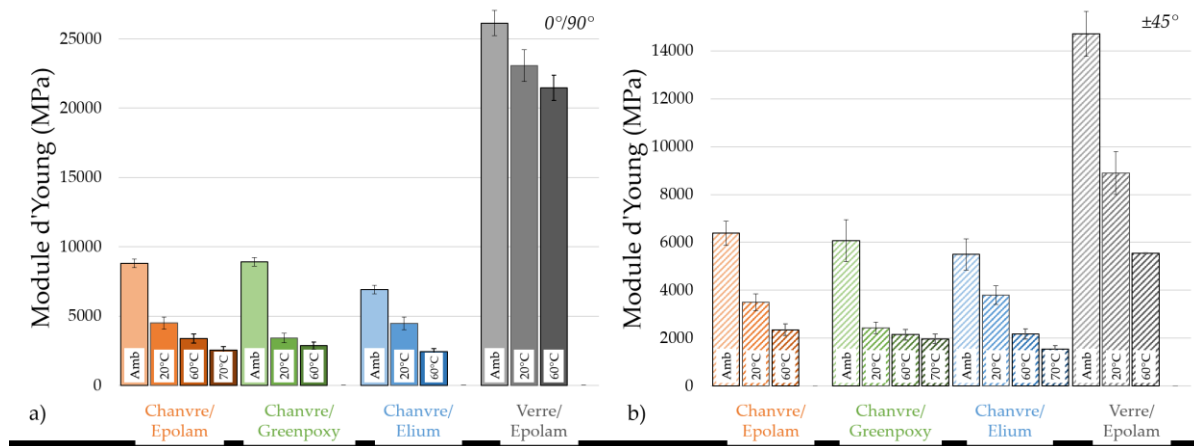


Figure IV.6 : Module d'Young des composites a) $0^\circ/90^\circ$ et b) $\pm 45^\circ$ non vieillis et saturés en eau à 20°C , 60°C et 70°C .

Quelles sont les évolutions des contraintes maximales des composites étudiés après saturation en eau à 20°C , 60°C et 70°C ? La Figure IV.7 présente les valeurs des contraintes maximales des composites $0^\circ/90^\circ$ (Figure IV.7a) et $\pm 45^\circ$ (Figure IV.7b) non vieillis et saturés en eau à 20°C , 60°C et 70°C . On observe que pour les composites chanvre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ et chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$, les contraintes maximales de traction ne sont pas affectées par la saturation en eau à 20°C (Figure IV.7a). Ces mêmes composites admettent une perte de contrainte maximale d'environ 8% après saturation en eau à 60°C ou 70°C . En revanche, les composites chanvre/Greenpoxy perdent en contrainte maximale dès la saturation en eau à 20°C . La valeur moyennée de contrainte maximale entre les saturations en eau à 20°C et 60°C subit une perte de 16% par rapport à l'état non vieilli. En revanche, c'est la contrainte à rupture

des composites verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ saturés en eau qui chute le plus, d'environ 30%, quelle que soit la température d'immersion. Ainsi, les pré-endommagements dus à l'immersion en eau ont un impact plus important sur les composites à renforts de verre. La Figure IV.7b montre que les composites à renfort orienté à $\pm 45^\circ$ présentent des pertes de contraintes maximales plus marquées que pour les $0^\circ/90^\circ$, mais toujours inférieures aux chutes de module d'Young constatées précédemment (Figure IV.6b). Après saturation en eau à 20°C , les composites chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ et chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ admettent une perte en contrainte maximale de 7% à 8%. Les composites chanvre/Greenpoxy sont encore une fois plus impactés par la saturation en eau à 20°C : la baisse en contrainte maximale est presque la même qu'après saturation en eau à 60°C ou 70°C , quasiment de 20%. Globalement, dans le cas des composites à renfort de chanvre, après saturation en eau chauffée, la baisse s'élève à 20-25% alors que les composites verre/Epolam $\pm 45^\circ$ admettent une perte en contrainte maximale de 32%. Là encore, les composites à renfort de verre semblent plus sensibles au vieillissement hydrique que les biocomposites.

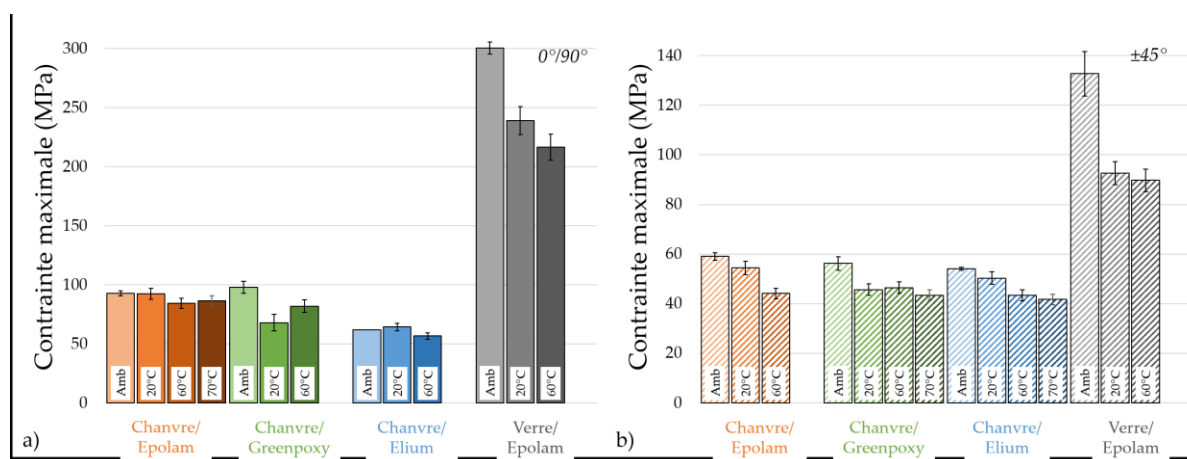


Figure IV.7 : Contrainte maximale des composites a) $0^\circ/90^\circ$ et b) $\pm 45^\circ$ non vieillis et saturés en eau à 20°C , 60°C et 70°C .

Enfin, la Figure IV.8 présente les valeurs de déformation à rupture des composites $0^\circ/90^\circ$ (Figure IV.8a) et $\pm 45^\circ$ (Figure IV.8b). Seuls les composites verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ ne sont pas affectés par la saturation en eau à 60°C . Pour les autres matériaux, quelle que soit l'orientation des renforts, la saturation en eau provoque une forte augmentation de la déformation à rupture. L'augmentation de la déformation à rupture est progressive dans le cas des composites à renfort de chanvre orienté à $0^\circ/90^\circ$. C'est également le cas des composites chanvre/Elium $\pm 45^\circ$. Pour les autres composites $\pm 45^\circ$, l'augmentation de la déformation à rupture est bien plus rapide : les valeurs maximales sont atteintes dès la saturation en eau à 20°C .

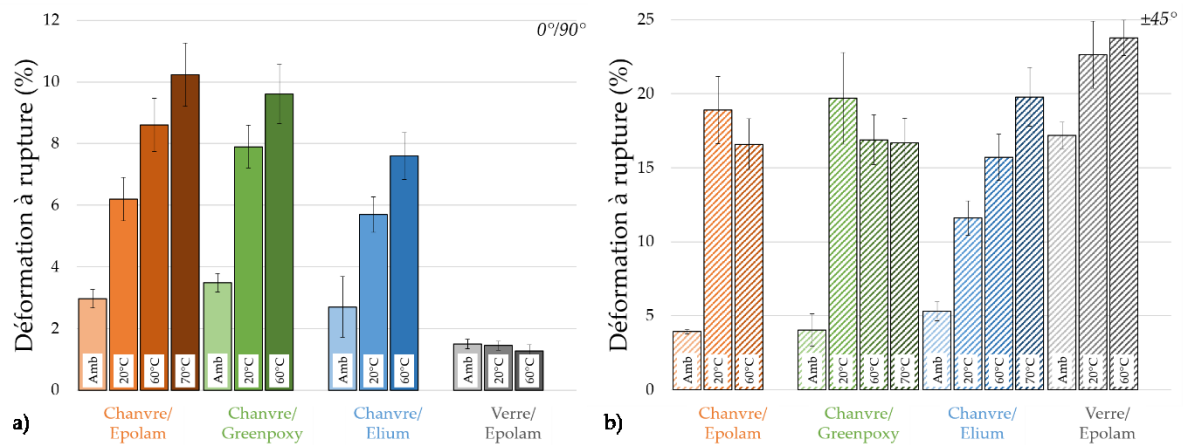


Figure IV.8 : Déformation à rupture des composites a) $0^\circ/90^\circ$ et b) $\pm 45^\circ$ non vieillis et saturés en eau à 20°C , 60°C et 70°C .

Globalement, on constate donc que, dans la majorité des cas, les plus grandes variations des propriétés mécaniques par rapport au stockage ambiant ont lieu dès l'immersion à 20°C . L'élévation de la température de l'eau à 60°C ou 70°C accentue ces variations mais dans une moindre mesure.

IV.2.3 Évolution du module sécant

De la même façon qu'en partie III.3.2 sur les composites non vieillis, les essais à chargements répétés progressifs réalisés sur les composites saturés en eau à 60°C et 70°C ont permis de suivre l'évolution du module sécant lors de la traction. Pour chaque niveau de chargement atteint σ_n , le rapport $E_{\sigma_n}^x/E_0^x$ est calculé et tracé en fonction de la contrainte appliquée. Ici, x représente l'état du matériau et prend les valeurs suivantes :

- si les composites sont non vieillis, alors $x = 0$,
- si les composites sont saturés en eau à 60°C , alors $x = 60^\circ\text{C}$,
- si les composites sont saturés en eau à 70°C , alors $x = 70^\circ\text{C}$.

Les Figures IV.9a et IV.9c présentent les courbes d'évolution du module sécant normé pour les composites à renfort de chanvre et les courbes concernant les composites verre/Epolam ont été ajoutées sur les Figures IV.9b et IV.9d. Les courbes des essais effectués sur des éprouvettes non vieilles et saturées en eau à 60°C et 70°C sont comparées. Les résultats montrent que, quelle que soit l'orientation, la cinétique d'endommagement est bien plus précoce et plus rapide pour les composites saturés en eau que pour ceux stockés à l'ambiante. Seuls les composites verre/époxy à $0^\circ/90^\circ$ ne sont pas affectés par l'immersion dans l'eau pour l'évolution du module sécant.

Concernant les composites à renfort de chanvre d'orientation $0^\circ/90^\circ$ saturés en eau, le module sécant diminue fortement dès le début de l'essai, avec une perte maximum d'environ 30% pour les composites à matrice époxy et 40% pour l'Elium. Cette valeur maximum est atteinte pour une contrainte appliquée voisine de 40 MPa pour les composites à matrice époxy et seulement 30 MPa pour l'Elium. Quelle que soit la résine, un changement de courbure est ensuite observé, correspondant à une augmentation du module sécant. Ce phénomène est plus marqué dans le cas des composites chanvre/Elium. Finalement, en fin d'essai, le module sécant des composites à renfort de chanvre saturés en eau se situe entre 75% et 85% du module d'Young alors que pour les composites non vieillis, seulement 50% à 55% du module d'Young était conservé en fin d'essai. L'augmentation du module sécant en cours de sollicitation mécanique, inattendue, sera étudiée en profondeur dans le chapitre VI. De même que pour les composites à renfort de chanvre, les composites verre/Epilam $0^\circ/90^\circ$ saturés en eau perdent environ 20% de leur module d'Young en fin d'essai de traction.

Concernant les composites à $\pm 45^\circ$, quel que soit le renfort, la diminution du module sécant est également plus précoce et plus rapide que lorsque les composites sont non vieillis (Figures IV.9c et IV.9d). Les composites verre/Epilam $\pm 45^\circ$ atteignent une valeur minimum de module sécant plus basse que celles atteintes par les composites à renfort de chanvre : 20% du module initial contre environ 40% pour les renforts chanvre (Figure IV.9d). Un changement de courbure est à nouveau observé, avec une croissance du module sécant en fin d'essai, pour les composites à renfort de verre et pour les composites chanvre/Elium. Les composites chanvre/Epilam $\pm 45^\circ$ et chanvre/Greenpoxy $\pm 45^\circ$ rompent avant l'apparition de cette augmentation de module sécant. Finalement, en fin d'essai, l'état saturé en eau à 60°C aboutit à des valeurs de module sécant de l'ordre de celles atteintes pour les matériaux non vieillis. Dans le cas des composites chanvre/Elium $\pm 45^\circ$, l'augmentation de la température d'immersion a comme effet d'augmenter la valeur finale du module sécant atteinte : $E_{\sigma_n}^{70^\circ\text{C}} / E_0^{70^\circ\text{C}} = 0,50$ contre $E_{\sigma_n}^{60^\circ\text{C}} / E_0^{60^\circ\text{C}} = 0,45$.

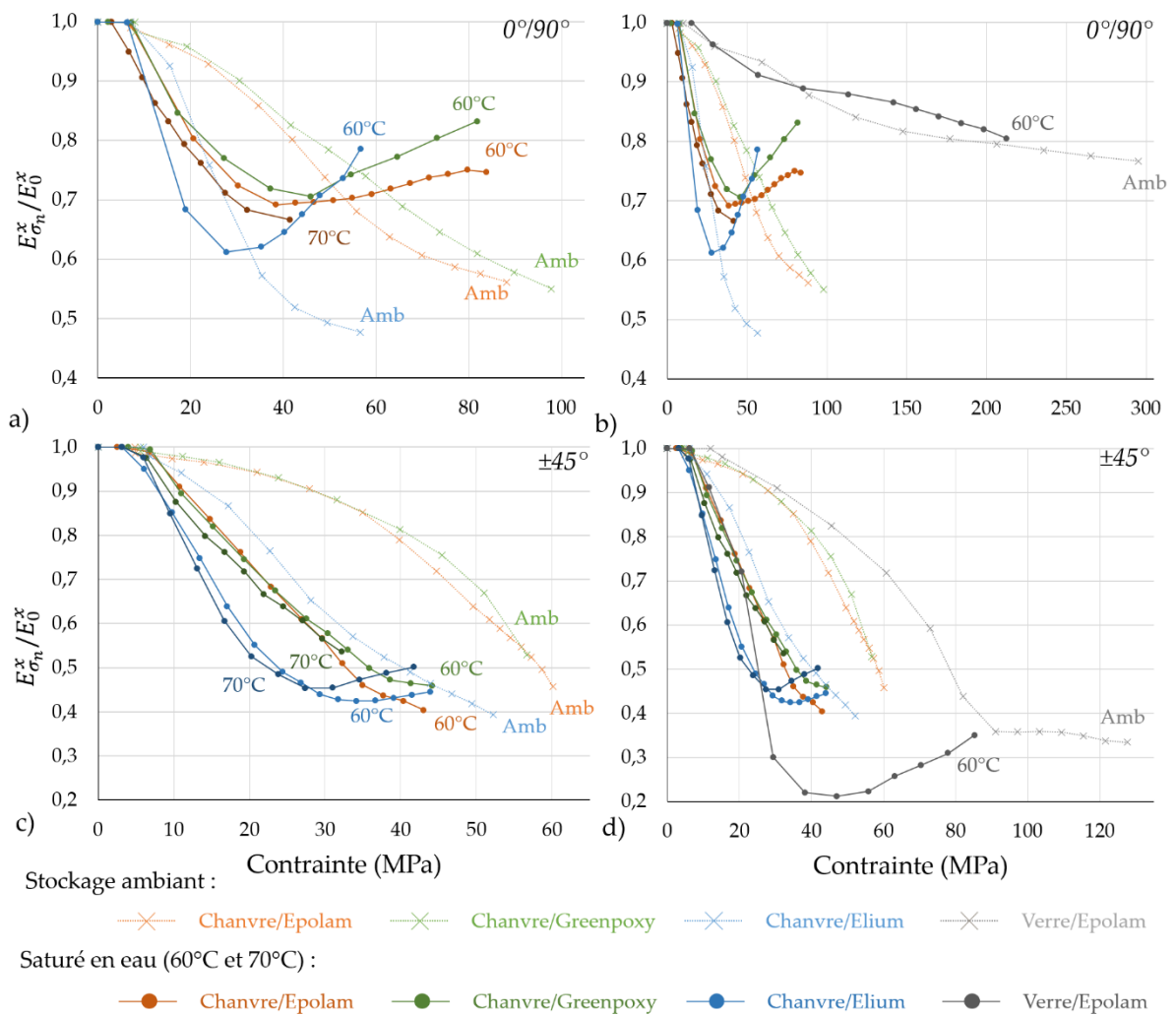


Figure IV.9 : Module sécant $E_{\sigma_n}^x$ normé par rapport au module d'Young E_0^x en fonction de la contrainte appliquée pour les composites non vieillis ($x = 0$) et saturés en eau à 60°C ($x = 60^\circ\text{C}$) et 70°C ($x = 70^\circ\text{C}$) : a) et c) à renfort de chanvre et b) et d) à renfort de chanvre et de verre.

Pour conclure, ces résultats montrent que la saturation en eau à 60°C ou 70°C a un impact sur l'évolution des modules sécants au cours de la traction (hormis pour les composites verre/Epolam 0°/90°) par rapport aux résultats obtenus après stockage à l'ambiante. De plus, il apparaît que les composites verre/Epolam ne sont pas moins impactés, avec des pertes finales de module sécant du même ordre de grandeur que celles obtenues pour les composites à renfort de chanvre. Enfin, on observe, pour les composites saturés en eau aux deux températures, que le passage de 60°C à 70°C n'a que peu d'influence sur l'évolution des modules sécants. Finalement, la température d'immersion qui sera retenue pour la fatigue hydrique est donc 60°C et seule cette température sera étudiée dans la suite.

IV.3 Effet du vieillissement hydrothermique sur les mécanismes d'endommagement

Dans cette partie, les mécanismes d'endommagement qui ont lieu au cours des essais de traction à chargements répétés progressifs après saturation dans l'eau à 60°C sont analysés par différentes techniques : mesure *in-situ* des émissions acoustiques, observations au MEB et acquisitions microtomographiques. Une comparaison avec les observations effectuées sur les composites non vieillis sera également faite.

IV.3.1 Suivi par émission acoustique

IV.3.1.1 Vitesse de propagation des ondes acoustiques

Avant chaque essai mécanique, la vitesse de propagation des ondes acoustiques sur la longueur des éprouvettes a été mesurée pour l'ensemble des matériaux composites. La Figure IV.10 présente les valeurs des vitesses obtenues pour les composites non vieillis (notés « Amb ») et saturés en eau à 60°C (notés « 60°C »). On observe, logiquement, que les composites dont les tissus sont orientés à 0°/90° admettent des vitesses de propagation plus élevées que ceux dont les renforts sont à ±45°. En effet, les renforts parallèles à la longueur des éprouvettes constituent un chemin privilégié pour les ondes acoustiques. Les fibres de verre étant meilleures conductrices, les vitesses sont plus élevées pour les composites verre/Epolam. Pour tous les composites étudiés, une diminution de la vitesse de propagation des ondes dans les éprouvettes saturées en eau à 60°C est observée. Les composites 0°/90° à renfort de chanvre saturés en eau à 60°C voient leur vitesse de propagation réduite de 24% à 28% par rapport à l'état non vieilli. La diminution de cette vitesse de propagation est plus importante pour les composites à renfort de chanvre orientés à ±45°, de 28% à 34%. Concernant les composites à renfort de verre, la perte de vitesse de propagation des ondes est plus modérée, allant de 12% pour les composites verre/Epolam 0°/90° à 14% pour les composites verre/Epolam ±45°.

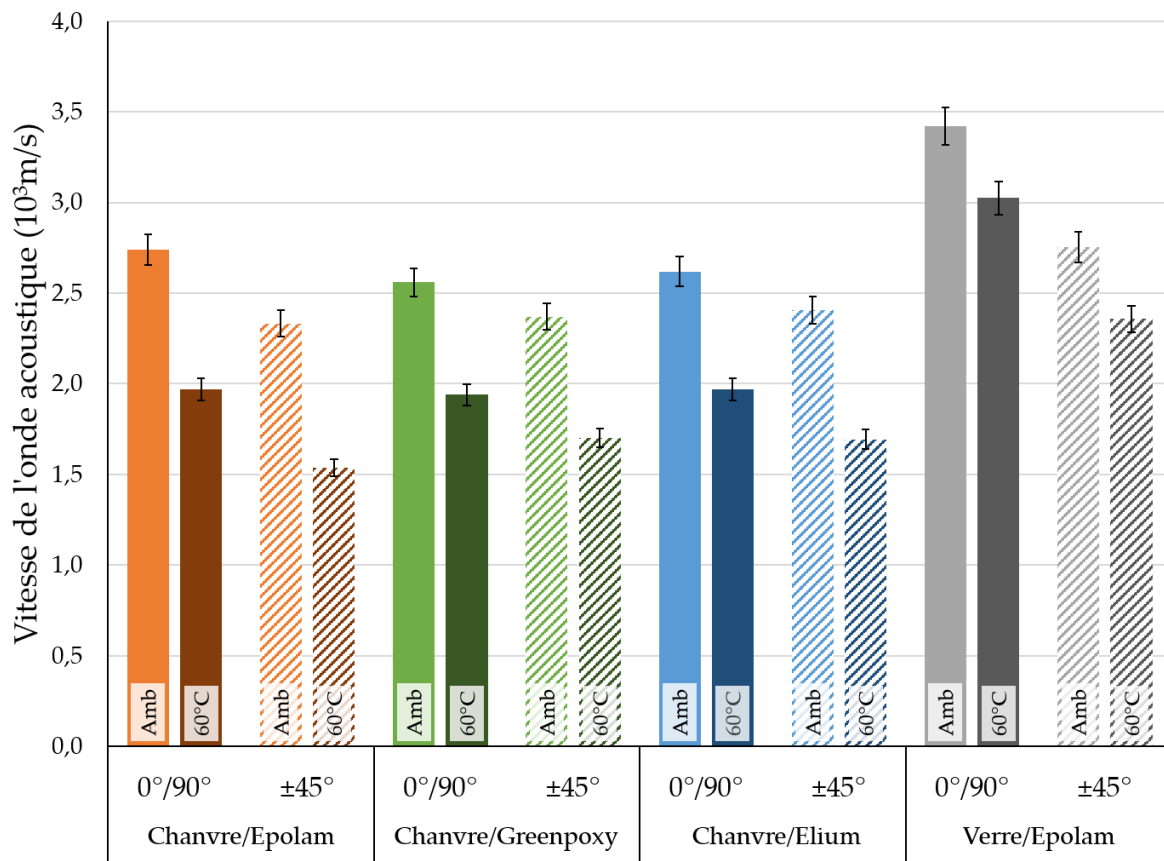


Figure IV.10 : Vitesses des ondes acoustiques mesurées avant traction pour les composites ayant subi un stockage ambiant ou un vieillissement en eau à 60°C jusqu'à saturation.

IV.3.1.2 Analyse énergétique des émissions acoustiques

De la même manière qu'en partie III.3.3.1, l'énergie absolue cumulée normée a été relevée lors de chaque essai de traction pour l'ensemble des composites de l'étude. La Figure IV.11 compare les courbes obtenues pour les composites à l'état non vieilli (courbes claires) et saturés en eau à 60°C (courbes foncées). Les résultats issus de l'éprouvette chanvre/Epolam à $\pm 45^\circ$ saturée en eau à 60°C ne sont pas présentés car non exploitables. La première observation à faire est qu'une légère « marche » apparaît en début d'essai pour les composites saturés en eau (Figure IV.11). Cette « marche » n'était pas présente dans le cas des composites non vieillis. Il est possible d'assimiler ce phénomène à des décollements précoces aux interfaces fil/matrice, pré-endommagées par la saturation en eau. Ensuite, on peut observer que les endommagements de haute énergie apparaissent plus tôt dans le cas des composites saturés en eau. Cela se vérifie quelles que soient la nature et l'orientation des renforts : les courbes sont décalées vers la gauche par rapport à celles issues des essais mécaniques sur les composites non vieillis. Les Figures IV.11a et IV.11c montrent que l'allure des courbes est conservée quel que soit le conditionnement des composites à renfort de chanvre. En revanche, pour les composites à renfort de verre, les Figures IV.11b et IV.11d

montrent une évolution de l'énergie acoustique plus brutale lorsqu'ils sont saturés en eau à 60°C que lorsqu'ils ont été stockés à l'ambiante. Cela traduit une apparition plus soudaine d'un grand nombre d'évènements acoustiques de haute énergie.

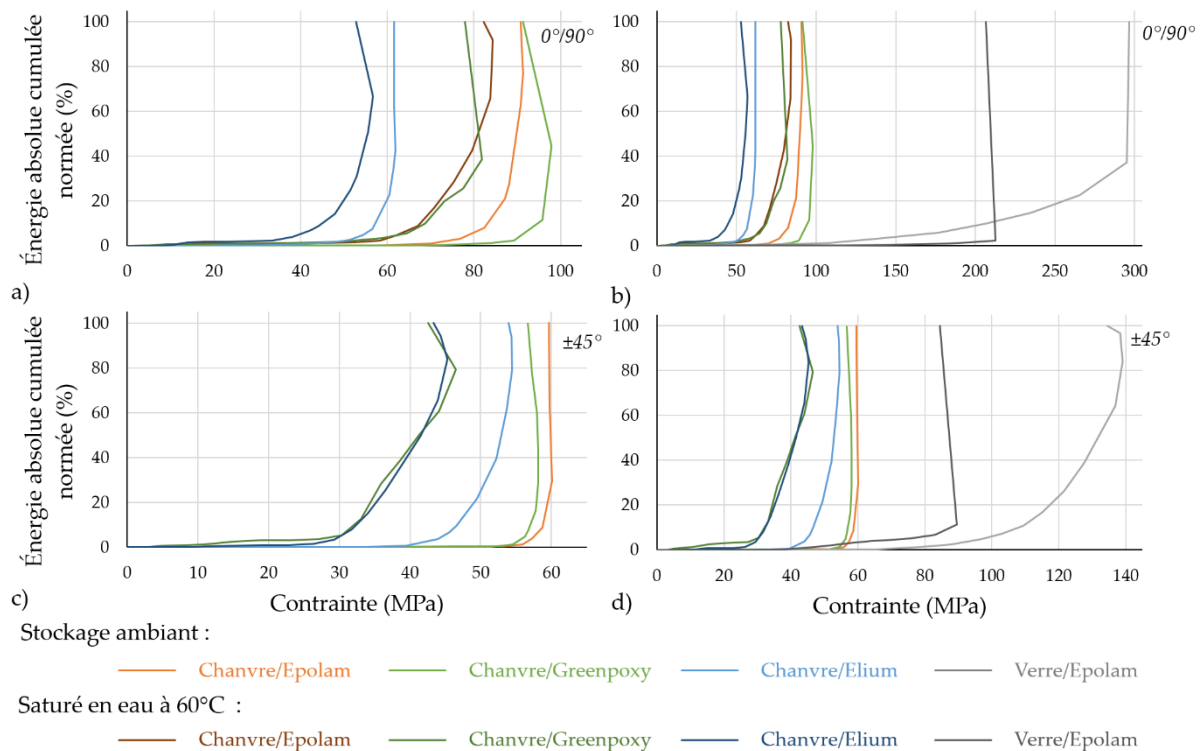


Figure IV.11 : Énergie absolue cumulée normée en fonction de la contrainte appliquée pour les composites non vieillis et saturés en eau à 60°C à renfort de chanvre a) orientés à 0°/90° et c) orientés à ±45° et pour l'ensemble des composites b) 0°/90° et d) ±45°.

De même que dans la partie III.3.3.1, la valeur de la contrainte appliquée correspondant au seuil à 5% d'énergie acoustique (EA) a été déterminée pour chaque composite. La Figure IV.12 permet de comparer les matériaux et les conditionnements entre eux. Les résultats obtenus confirment ce qui a été observé en Figures IV.11a et IV.11c : les endommagements apparaissent pour des contraintes appliquées plus faibles pour les composites saturés en eau. Seul le verre/Epolam à 0°/90° semble avoir un comportement inverse, mais la forme particulière des courbes rend toute interprétation difficile.

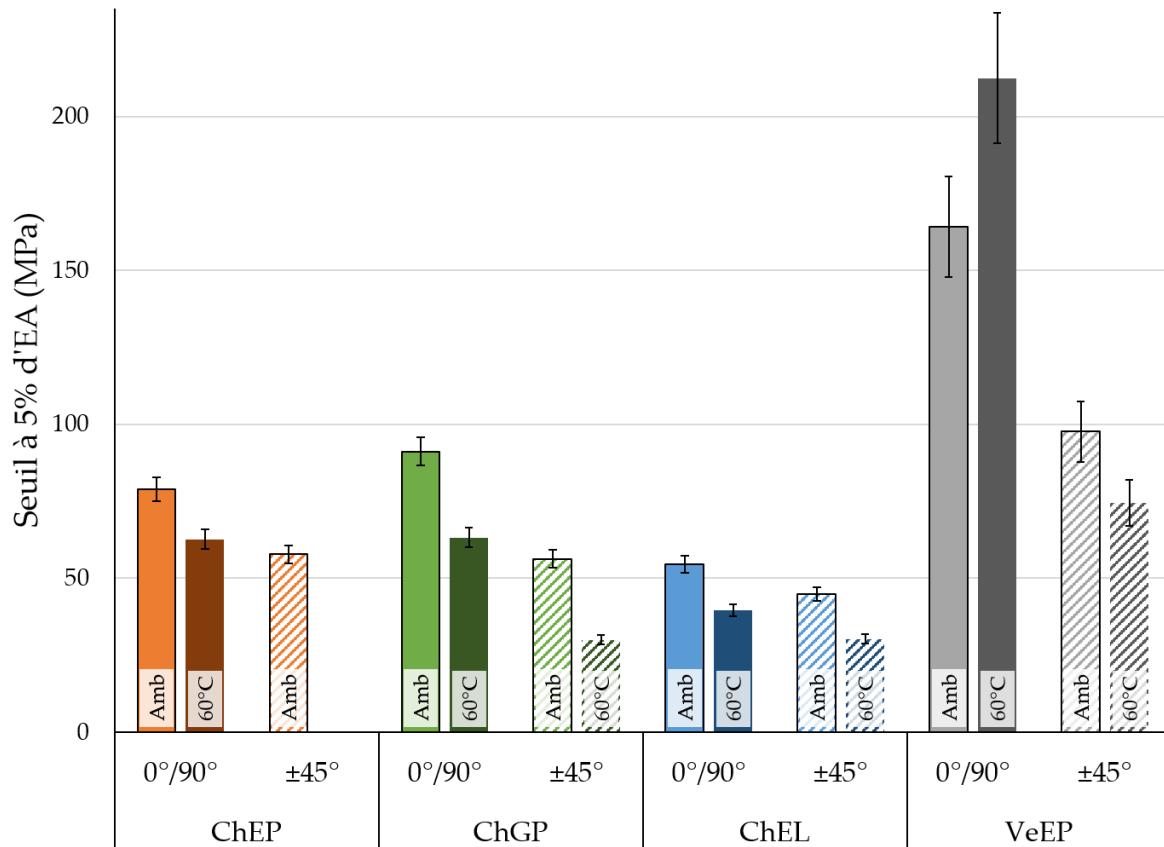


Figure IV.12 : Seuil à 5% d'EA pour l'ensemble des composites stockés à l'ambiante et saturés en eau à 60°C.

Les composites saturés en eau ayant des contraintes à rupture différentes de celles des composites non vieillis, il est également intéressant de comparer les contraintes seuils à 5% d'EA normées par la contrainte à rupture de chaque matériau. Le Tableau IV.2 présente donc les variations, entre l'état saturé en eau à 60°C et l'état non vieilli, des seuils à 5% d'EA normés par la contrainte à rupture du matériau dans l'état correspondant. Les résultats obtenus montrent que les composites saturés en eau à 60°C atteignent le seuil à 5% d'EA de manière plus précoce au cours de l'essai. Cela indique que, après saturation en eau à 60°C, les endommagements apparaissent non seulement pour des valeurs de contraintes plus faibles (Figure IV.12) mais également plus précocement pendant l'essai (Tableau IV.2).

Tableau IV.2 : Variations des seuils à 5% d'EA normés par la contrainte à rupture ($\Delta S_{5\%}$) pour les composites saturés en eau à 60°C par rapport au stockage ambiant.

	Chanvre/Epolam		Chanvre/Greenpoxy		Chanvre/Elium		Verre/Epolam	
	0°/90°	±45°	0°/90°	±45°	0°/90°	±45°	0°/90°	±45°
$\Delta S_{5\%}$	-13%	-	-17%	-36%	-21%	-16%	/	-2,7%

Ces résultats mettent en évidence le rôle « accélérateur » de la saturation en eau sur le développement des endommagements en traction et sont en concordance avec la dégradation des propriétés observée dans la partie IV.2.

IV.3.2 Observation des endommagements *post-mortem*

Tout d'abord, il est important de noter que les observations MEB et microtomographiques *post-mortem* ont été réalisées dans un état différent de celui étudié lors des essais mécaniques (saturé en eau à 60°C). En effet, les échantillons ont eu le temps de sécher avant ces observations. Cependant, les observations *post-mortem* permettent d'analyser les mécanismes d'endommagement mis en jeu.

IV.3.2.1 Observation des faciès de rupture

La Figure IV.13 montre les faciès de rupture des composites à renfort de chanvre et de verre d'orientation 0°/90° (colonne de gauche) et ±45° (colonne de droite). Les grossissements ont été choisis en fonction de la taille des renforts, d'où une résolution plus fine pour les composites verre/Epilam. Par rapport au stockage ambiant (Figure III.12), les décohésions fil/matrice sont bien plus développées lorsque les composites à renfort de chanvre ont été saturés en eau à 60°C. Également, un plus grand nombre d'arrachements de fibres unitaires sont observés, notamment pour l'orientation 0°/90°, par rapport à la Figure III.12. Cela s'explique par le fait que, pour des composites tissés 0°/90°, les fils de chaîne, et donc leur interface avec la matrice, sont directement sollicités dans leur direction longitudinale. On peut également noter que peu de différences avec le stockage ambiant sont observables à la suite de la saturation en eau des composites verre/Epilam.

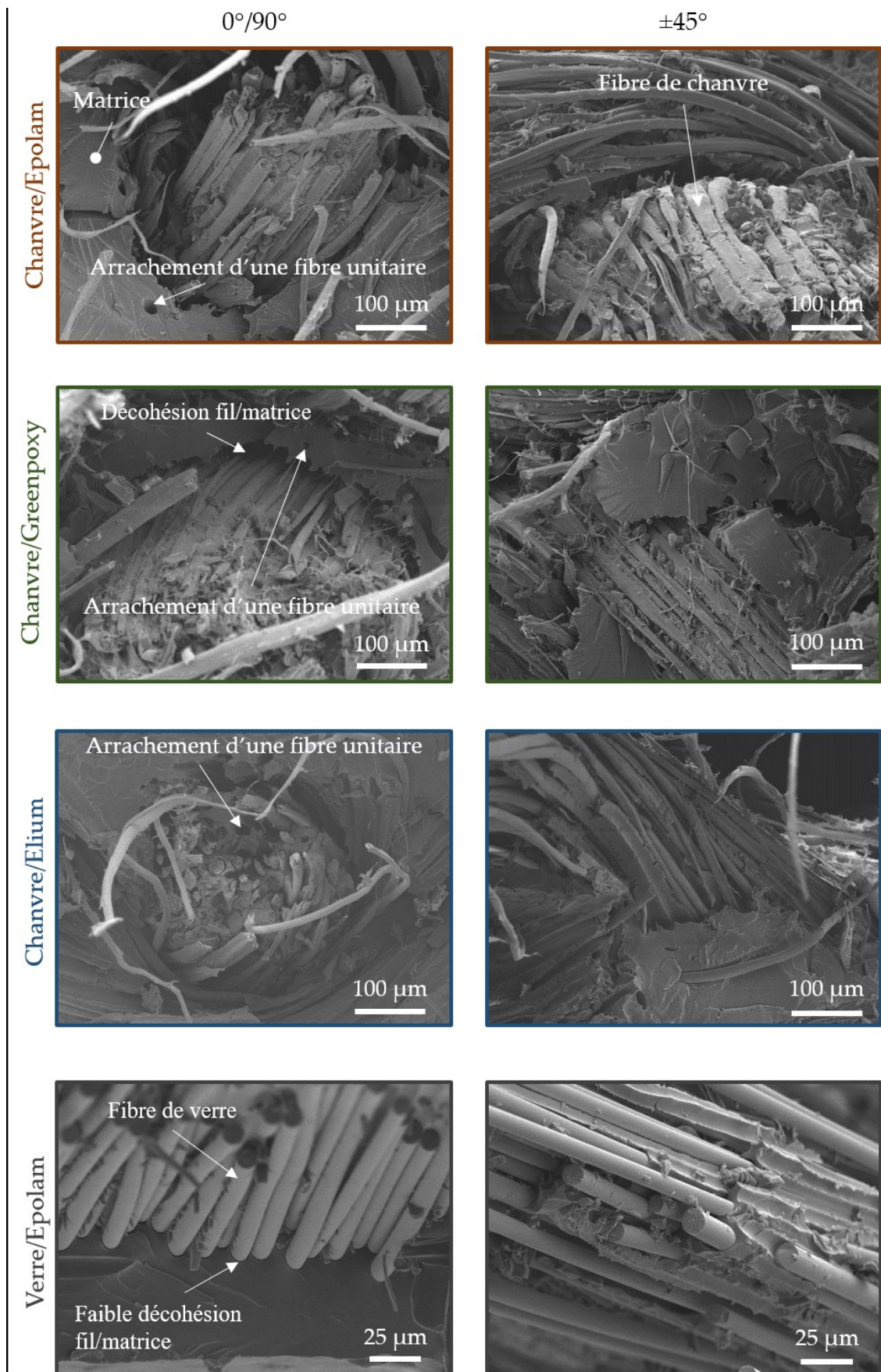


Figure IV.13 : Images au microscope électronique à balayage des faciès de rupture en traction des composites de l'étude saturés en eau à 60°C.

IV.3.2.2 Observation des endommagements par microtomographie

Des acquisitions d'images microtomographiques ont également été réalisées après essai mécanique pour l'ensemble des éprouvettes saturées en eau à 60°C. La Figure IV.14 présente, pour chaque composite à renfort de chanvre, une slice centrale issue du stack XZ, après rupture. On constate tout d'abord que quelques porosités sont visibles dans le cas des composites chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy (les plus grosses sont de l'ordre de 0,1 mm de diamètre). Les décohésions à l'interface fil/matrice observées au MEB (Figure IV.13) se retrouvent ici sur l'ensemble de la longueur scannée des éprouvettes. Ces décohésions sont très nombreuses et très ouvertes. Elles se propagent d'une interface à l'autre en traversant des zones matricielles, créant ainsi des fissures matricielles (Figure IV.14). La comparaison de ces observations avec celles effectuées par R. Barbière dans sa thèse [13] sur des composites chanvre/Epolam après saturation en eau à 20°C permet de vérifier que l'élévation de la température de l'eau, si elle accélère les phénomènes, ne modifie pas les mécanismes d'endommagement.

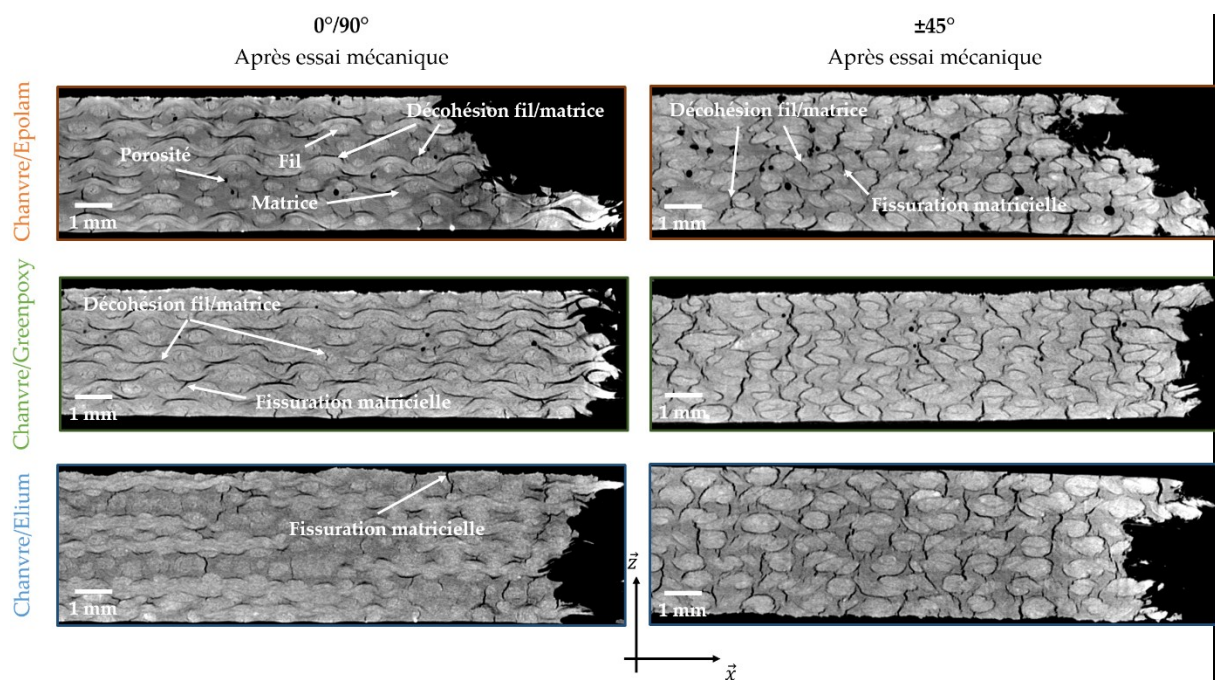


Figure IV.14 : Microtomographies des composites saturés en eau à 60°C à renfort de chanvre orienté à 0°/90° et ±45° après rupture en traction.

IV.4 Paramètres de fatigue hydrique

D'après les résultats précédents, il est à présent possible de fixer les paramètres de fatigue hydrique à appliquer. L'immersion dans l'eau à 60°C ou 70°C permet d'atteindre la

saturation en moins de 2 semaines pour l'ensemble des composites étudiés (Figure IV.3). Afin de rester assez éloigné des températures de transition vitreuse des matrices, la température d'immersion choisie est de 60°C. Par rapport à une température d'immersion à 20°C, il a été montré qu'une immersion à 60°C peut potentiellement accélérer la dégradation des propriétés mécaniques, sans toutefois modifier les mécanismes d'endommagement mis en jeu. La durée d'immersion choisie pour chaque cycle est de 12 jours, dans le but d'atteindre la saturation en eau pour tous les composites étudiés. En choisissant ces paramètres d'immersion dans l'eau (12 jours à 60°C), on se place donc dans une configuration suffisamment critique pour garantir la tenue des composites dans la plupart des situations de fatigue hydrique. Concernant la phase de séchage, il a été décidé de choisir la même que celle utilisée dans les travaux de Barbière [13], soit 2 jours à 40°C, ce qui permet, de sécher complètement des éprouvettes à renfort de chanvre tout en s'éloignant de la température de transition vitreuse, qui a tendance à diminuer lorsque le matériau est saturé en eau [63]. La Figure IV.15 montre une schématisation du vieillissement par fatigue hydrique appliqué aux matériaux de l'étude.

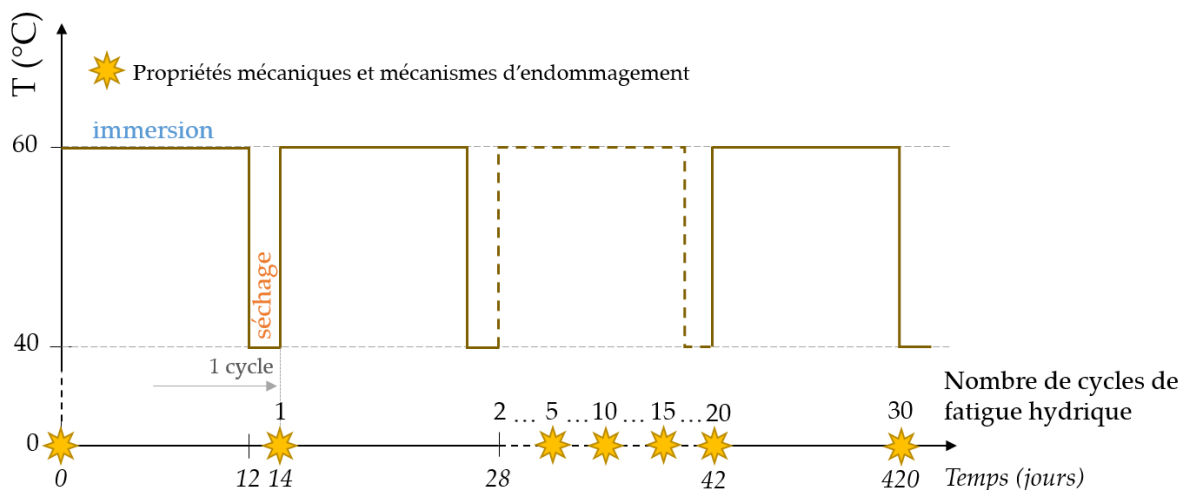


Figure IV.15 : Schématisation des cycles de fatigue hydrique appliqués aux matériaux de l'étude.

Grâce au jeu de paramètres choisi, 30 cycles de fatigue hydrique ont pu être effectués, soit une durée de vieillissement de 420 jours. Un total de 150 échantillons a été soumis à ces cycles de fatigue hydrique. Un suivi gravimétrique et un suivi des variations des dimensions ont été effectués pendant le vieillissement. Périodiquement, après 1, 5, 10, 15, 20 et 30 cycles de fatigue hydrique, certains échantillons ont été prélevés pour être testés mécaniquement. La procédure appliquée a toujours été la même : l'échantillon prélevé est tout d'abord scanné au microtomographe afin d'observer les endommagements créés par la fatigue hydrique seule, puis il est testé en traction à chargements répétés progressifs avec un suivi par émission acoustique, et, post-mortem, il est observé au MEB et à nouveau scanné par microtomographie.

Pour comparer les paramètres de fatigue hydrique choisis ici avec ceux issus de la bibliographie, le Tableau IV.2 reprend le Tableau I.3 avec une colonne supplémentaire correspondant à cette thèse.

De plus, pour s'assurer que les phénomènes observés sont bien liés au vieillissement hydrique et non pas seulement aux variations de températures, certains échantillons ont été soumis à un vieillissement identique au précédent (Figure IV.15) mais sans immersion dans l'eau. Pour ces échantillons, le vieillissement était donc constitué d'une succession de cycles comprenant chacun 12 jours à 60°C et 2 jours à 40°C. Ce vieillissement sera nommé « fatigue thermique ».

Tableau IV.3 : Bilan des études sur la fatigue hydrique de la bibliographie et comparaison avec les paramètres de fatigue hydrique choisis dans ces travaux de thèse.

	Freund [81]	Mak [82]	Sodoke [83]	Cadu [84]	Travaux de thèse
Renfort	Lin, Verre	Lin, Verre	Lin	Lin	<u>Chanvre, Verre</u>
Matrice	Elium	Époxy, Bioépoxy	Époxy	Époxy	<u>Époxy, Bioépoxy, Elium</u>
Conditionnement hydrique	80% RH	Eau	Eau	90% RH	<u>Eau</u>
T_{imm} (°C)	80	23	21	55	<u>60</u>
t_{imm}	Variable	23 jours	Saturation	3,5 jours	<u>12 jours</u>
Séchage	10% RH	Étuve	Étuve	40% RH	<u>Étuve</u>
T_{séch} (°C)	80	60	60	55	<u>40</u>
t_{séch}	Variable	5 jours	2 jours	3,5 jours	<u>2 jours</u>
N	5	12	7	52	<u>30</u>

Bilan sur le préambule à la fatigue hydrique

Ce chapitre a permis d'analyser le comportement à l'absorption en eau des composites à renfort de chanvre et de verre pour différentes températures d'immersion. Le comportement à l'absorption suit une loi de diffusion de Fick 1D, quelle que soit la température d'immersion. Lorsque celle-ci est égale à la température ambiante, il faut plus de trois mois pour que l'ensemble des composites atteigne la saturation en eau. Ainsi les conditions ambiantes ne permettent pas de réaliser du vieillissement par fatigue hydrique avec un nombre élevé de cycles. L'immersion dans de l'eau à 60°C et 70°C permet une accélération de la cinétique d'absorption, qui se traduit notamment par une augmentation du coefficient de diffusion de Fick.

Des essais de traction ont ensuite été réalisés sur les éprouvettes de composites tissés à renfort de chanvre et de verre saturées en eau à 20°C, 60°C et 70°C. La détermination des propriétés mécaniques macroscopiques en fonction de la température d'immersion a permis de montrer que les composites chanvre/Greenpoxy sont plus impactés par une saturation à température ambiante que les autres composites. Toutefois, les pertes en propriétés mécaniques après saturation en eau à 60°C ou 70°C sont sensiblement les mêmes quel que soit le composite à renfort de chanvre. Aussi, il est intéressant de noter que les composites verre/Epolam $\pm 45^\circ$ admettent des pertes en contrainte maximale et en module d'Young du même ordre de grandeur ou même plus importantes que les composites à renfort de chanvre. Les essais à chargements répétés progressifs ont permis de suivre l'évolution des modules sécants lors de la traction. Les résultats montrent un très fort impact du vieillissement en eau à 60°C et 70°C par rapport aux composites stockés à l'ambiante, avec une chute précoce du module sécant – excepté pour le verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ –, et, dans certains cas, une ré-augmentation en fin d'essai. Finalement, les composites verre/Epolam subissent des pertes finales de module sécant du même ordre de grandeur que celles obtenues pour les composites à renfort de chanvre.

L'étude des événements acoustiques émis pendant la sollicitation mécanique des composites après saturation dans l'eau à 60°C a permis de mettre en évidence une cinétique d'endommagement plus précoce que pour ceux stockés à l'ambiante. Cela signifie que des événements de haute énergie apparaissent pour des niveaux de contrainte plus faibles, ce qui s'explique par les dégradations créées lors de l'immersion dans l'eau. Les observations *post-mortem* par MEB des faciès de rupture des composites immergés dans l'eau à 60°C ont permis de mettre en évidence, pour les composites à renfort de chanvre, de larges décohésions à l'interface fil/matrice, plus importantes que celles observées après stockage à l'ambiante. Les observations microtomographiques montrent également des décohésions interfaciales très nombreuses et très ouvertes, qui se propagent d'une interface à l'autre en créant des fissures matricielles.

Enfin, les résultats obtenus dans ce chapitre ont permis de fixer les paramètres du vieillissement par fatigue hydrique. Chaque cycle de fatigue hydrique sera donc constitué d'une phase d'immersion dans de l'eau à 60°C pendant 12 jours suivie d'une phase de séchage en étuve pendant 2 jours à 40°C. L'objectif final est de réaliser 30 cycles de fatigue hydrique, représentant un vieillissement cumulé de 420 jours.

V. Influence de la fatigue hydrique sur le comportement des composites

Ce chapitre a pour objectif de décrire l'évolution du comportement des composites à renfort de chanvre et de verre tout au long du vieillissement par fatigue hydrique. Il s'agira en particulier d'analyser les cinétiques d'absorption en eau lors de la fatigue hydrique ainsi que l'évolution de quelques propriétés physiques des composites, telles que la transition vitreuse et le gonflement hygroscopique. De plus, après différents nombres de cycles de fatigue hydrique, des éprouvettes ont été retirées du vieillissement afin de suivre l'évolution du comportement mécanique de l'ensemble des composites.

V.1 Absorption en eau

Lors des phases d'absorption des cycles de fatigue hydrique, les masses de certains échantillons ont été relevées afin de décrire le comportement à l'absorption de l'ensemble des composites étudiés tout au long du vieillissement.

V.1.1 Courbes d'absorption en eau en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique

La Figure V.1 présente la variation relative de masse M_t des composites étudiés en fonction du temps, exprimé en heure, pour les quinze premiers, le 20^{ème}, le 25^{ème} et le 30^{ème} cycles de fatigue hydrique. La variation relative de masse M_t a été déterminée selon l'équation I.5, avec comme masse de référence la masse initiale relevée avant le début du premier cycle de fatigue hydrique. Cela explique la présence de valeurs négatives sur la Figure V.1. De même que pour le vieillissement jusqu'à saturation en eau (partie IV.1.1), il a été observé que l'orientation des tissus de chanvre et de verre n'avait pas d'influence sur la variation de masse, quel que soit le nombre de cycles de fatigue hydrique. On peut également noter que les conditions de vieillissement appliquées lors du 1^{er} cycle de fatigue hydrique sont les mêmes que celles appliquées aux échantillons saturés en eau à 60°C dans la partie IV.1.1. Les courbes de la Figure V.1 montrent que les paramètres de fatigue hydrique choisis permettent bien à l'ensemble des échantillons d'atteindre la saturation en eau à chaque cycle. On observe également que, pour le composite chanvre/Greenpoxy, la variation relative de masse à saturation est quasi-constante et autour de 8%. En revanche, pour les autres composites, une décroissance continue de la valeur maximale de M_t est observée avec l'augmentation du nombre de cycles de fatigue hydrique. Cette décroissance est plus marquée dans le cas du composite verre/Epilam, qui atteint même des valeurs négatives de variation relative de masse dès le 13^{ème} cycle de fatigue hydrique. Il a d'autre part été vérifié que, tout au long de la fatigue hydrique, le comportement à l'absorption de l'ensemble des composites étudiés suit le modèle unidirectionnel de Fick.

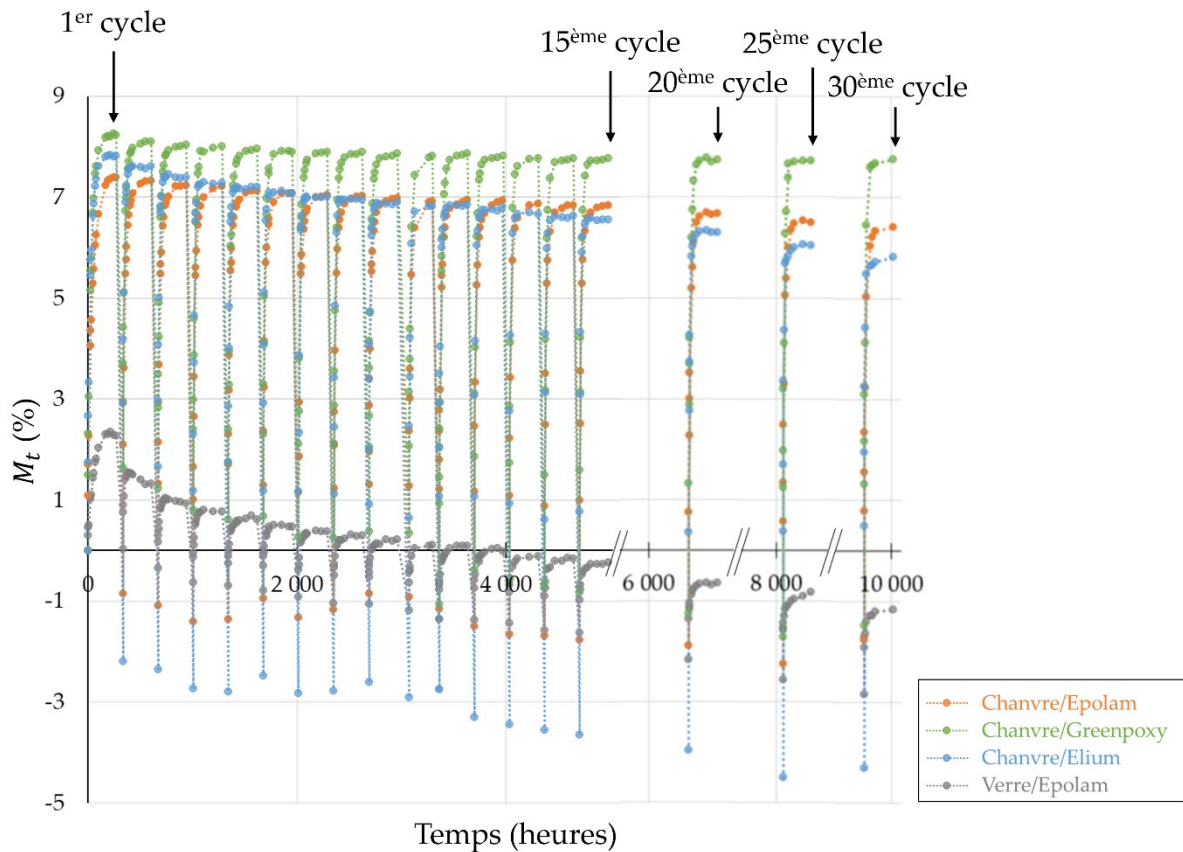


Figure V.1 : Courbes expérimentales caractéristiques de la variation relative de masse M_t des composites en fonction du temps jusqu'à 30 cycles de fatigue hydrique.

Les paramètres caractéristiques de l'absorption d'eau des matériaux composites au cours de la fatigue hydrique ont donc été calculés. La Figure V.2 présente l'évolution des variations relatives de masse à saturation M_∞^i normées par le taux volumique de fibres v_f de chaque éprouvette en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique i . Pour ce calcul, la masse avant chaque début de cycle i (m_0^i) a été utilisée (équation II.7). Pour le composite verre/Epolam, une forte diminution de la variation de masse à saturation M_∞^i/v_f est observée entre le 1^{er} et le 2^{ème} cycle de fatigue hydrique. Ensuite, la variation relative de masse à saturation est constante, quel que soit le nombre de cycles de fatigue hydrique. Dans le cas des composites à renfort de chanvre, l'évolution est différente : une augmentation suivie d'une stabilisation du taux d'absorption à saturation est observée lorsque le nombre de cycles de fatigue hydrique augmente. En ce qui concerne le chanvre/Greenpoxy, c'est le seul biocomposite qui voit sa masse relative à saturation diminuer fortement dans un premier temps, entre le 1^{er} et le 2^{ème} cycle de fatigue hydrique. Cette diminution peut s'expliquer par une difficulté du matériau à sécher complètement lors des premières phases de séchage de fatigue hydrique, ce qui va ensuite s'atténuer avec la succession des cycles de fatigue hydrique. Au 30^{ème} cycle de fatigue hydrique, la valeur de la variation relative de masse à saturation normée atteinte par les composites à renfort de chanvre et à matrice thermodule avoisine 0,24. Pour le composite chanvre/Elium, M_∞^{30} est 1,16 fois plus élevée et atteint 11,4%. Le Tableau V.1

indique l'écart des taux d'absorption à saturation entre le 1^{er} et le 30^{ème} cycle de fatigue hydrique (ΔM_{∞}^{30}), ainsi que les valeurs normées associées (M_{∞}^i/v_f). On observe que c'est le composite à matrice thermoplastique (chanvre/Elium) qui voit sa masse relative à saturation progresser le plus au cours de la fatigue hydrique (+40%), tandis que pour le verre/époxy elle chute de 31%.

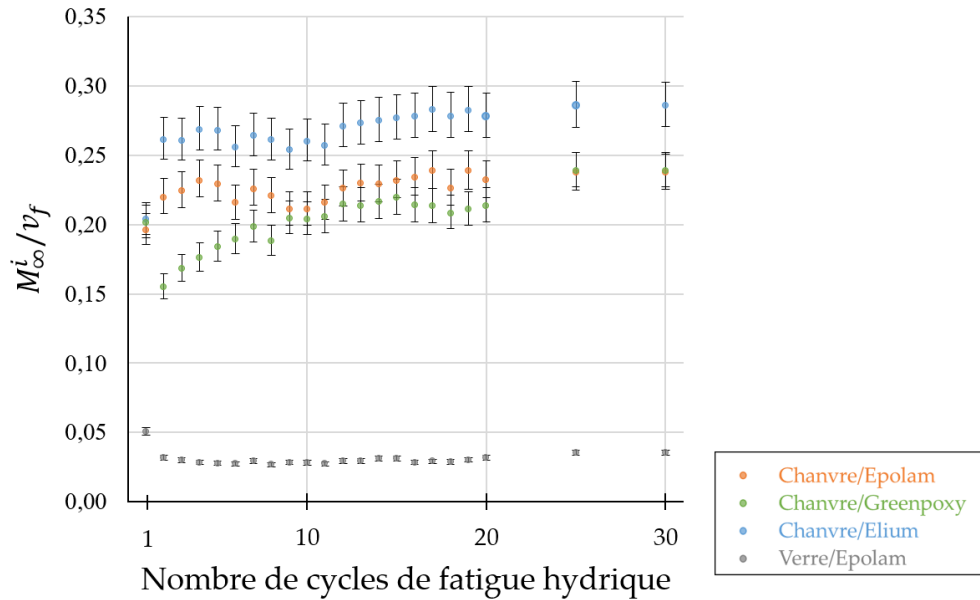


Figure V.2 : Variation relative de masse à saturation M_{∞}^i normée par le taux volumique de fibres v_f de chaque échantillon pour l'ensemble des composites en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique i .

Tableau V.1 : Taux d'absorption à saturation normés pour l'ensemble des composites aux cycles de fatigue hydrique numéro 1 et 30 et variation de ce taux entre les cycles 1 et 30 de fatigue hydrique.

	Chanvre/Epolam	Chanvre/Greenpoxy	Chanvre/Elium	Verre/Epolam
M_{∞}^1/v_f	$0,196 \pm 0,012$	$0,202 \pm 0,012$	$0,204 \pm 0,012$	$0,051 \pm 0,003$
M_{∞}^{30}/v_f	$0,238 \pm 0,013$	$0,239 \pm 0,013$	$0,286 \pm 0,016$	$0,035 \pm 0,002$
ΔM_{∞}^{30}	+21 %	+18%	+40%	-31%

V.1.2 Cinétique d'absorption en eau sous fatigue hydrique

Les coefficients de diffusion (équation II.10) sont présentés en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique i pour l'ensemble des composites étudiés sur la Figure V.3. Deux comportements distincts sont observés : une croissance du coefficient de diffusion dès le premier cycle de fatigue hydrique suivie d'une stabilisation plus ou moins rapidement atteinte pour les composites à matrice thermodure (verre/Epolam compris), et une forte croissance dès

le second cycle de fatigue hydrique suivi d'une croissance linéaire jusqu'au 30^{ème} cycle pour le composite chanvre/Elium.

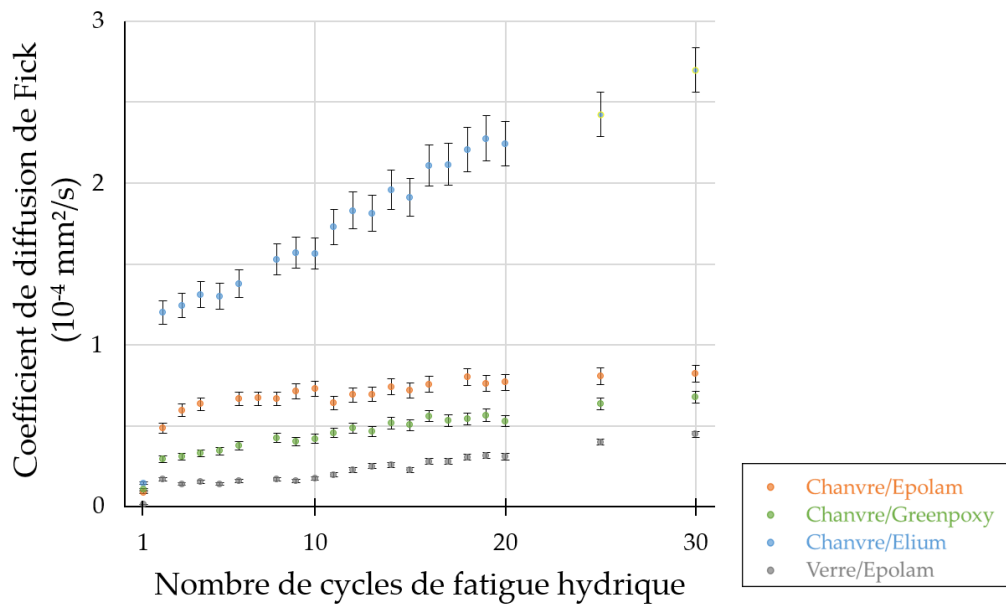


Figure V.3 : Coefficient de diffusion de Fick D_i pour l'ensemble des composites de l'étude en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique i .

Le coefficient de diffusion D_i du composite verre/Epolam est logiquement inférieur à celui des composites chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy, qui possèdent une matrice de la même famille mais des renforts naturels. La stabilisation du coefficient de diffusion du composite verre/Epolam intervient plus tardivement que celle des composites chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy, qui apparaît autour du 10^{ème} cycle de fatigue hydrique. La plus forte augmentation entre deux cycles de fatigue hydrique intervient dès les deux premiers cycles. Le Tableau V.2 donne les valeurs des coefficients de diffusions aux cycles 1, 2 et 30 (D_1 , D_2 et D_{30}) pour l'ensemble des composites étudiés. Dans ce Tableau Figure également les rapports entre ces coefficients de diffusion pour comparaison (D_2/D_1 et D_{30}/D_1). On constate que le matériau qui voit son coefficient de diffusion augmenter le plus au cours du vieillissement par fatigue hydrique est le composite verre/Epolam (x12 au deuxième cycle, x32 au cycle de fatigue numéro 30). Le matériau dont le coefficient de diffusion de l'eau est le moins impacté par la fatigue hydrique est le composite chanvre/Greenpoxy, comme c'était déjà le cas en termes de variations relatives de la masse (Tableau V.1). Les résultats sur le composite chanvre/Epolam sont cohérents avec ceux issus des travaux de Newman [78]. En effet, pour des composites tissés lin/époxy ayant subi douze cycles de fatigue hydrique en immersion dans de l'eau à 20°C, il avait mesuré un coefficient de diffusion multiplié par 12 en fin de fatigue hydrique. Dans notre cas, le coefficient de diffusion du composite chanvre/Epolam, stabilisé depuis le 10^{ème} cycle de fatigue hydrique, est environ 9 fois supérieur à la valeur initiale D_1 (Tableau V.2), ce qui est du même ordre de grandeur que la valeur obtenue par Newman. Le comportement

distinct des composites chanvre/Elium est attribuable à la nature différente de la matrice (acrylique thermoplastique).

Tableau V.2 : Coefficients de diffusion aux cycles de fatigue hydrique numéro 1, 2 et 30 et variations par rapport au 1^{er} cycle de fatigue hydrique pour l'ensemble des composites étudiés.

	Chanvre/Epolam	Chanvre/Greenpoxy	Chanvre/Elium	Verre/Epolam
D_1 ($10^{-4}\text{mm}^2/\text{s}$)	$0,089 \pm 0,005$	$0,108 \pm 0,006$	$0,146 \pm 0,009$	$0,014 \pm 0,001$
D_2 ($10^{-4}\text{mm}^2/\text{s}$)	$0,485 \pm 0,030$	$0,296 \pm 0,018$	$1,200 \pm 0,065$	$0,170 \pm 0,011$
D_2/D_1	5,45	2,74	8,22	12,1
D_{30} ($10^{-4}\text{mm}^2/\text{s}$)	$0,822 \pm 0,049$	$0,676 \pm 0,041$	$2,700 \pm 0,117$	$0,447 \pm 0,027$
D_{30}/D_1	9,24	6,29	18,5	31,9

V.2 Modifications physiques liées à la fatigue hydrique

Cette partie se focalise sur les changements physiques qu'implique la fatigue hydrique sur les composites étudiés. La température de transition vitreuse a été déterminée pour l'ensemble des composites de l'étude après 10 cycles de fatigue hydrique et comparée aux états non vieilli et saturé en eau à 60°C. D'autre part, les variations géométriques (épaisseur et section) des éprouvettes ont également été suivies pendant le vieillissement par fatigue hydrique.

V.2.1 Température de transition vitreuse

La Figure V.4 présente les thermogrammes de DSC obtenus pour l'ensemble des biocomposites étudiés pour les trois conditionnements suivants : « Non vieilli », « Saturé en eau à 60°C » et après 10 cycles de fatigue hydrique. Les thermogrammes des composites non vieillis sont ceux qui ont permis de déterminer les températures de transition vitreuse des matériaux après fabrication (Tableau II.2).

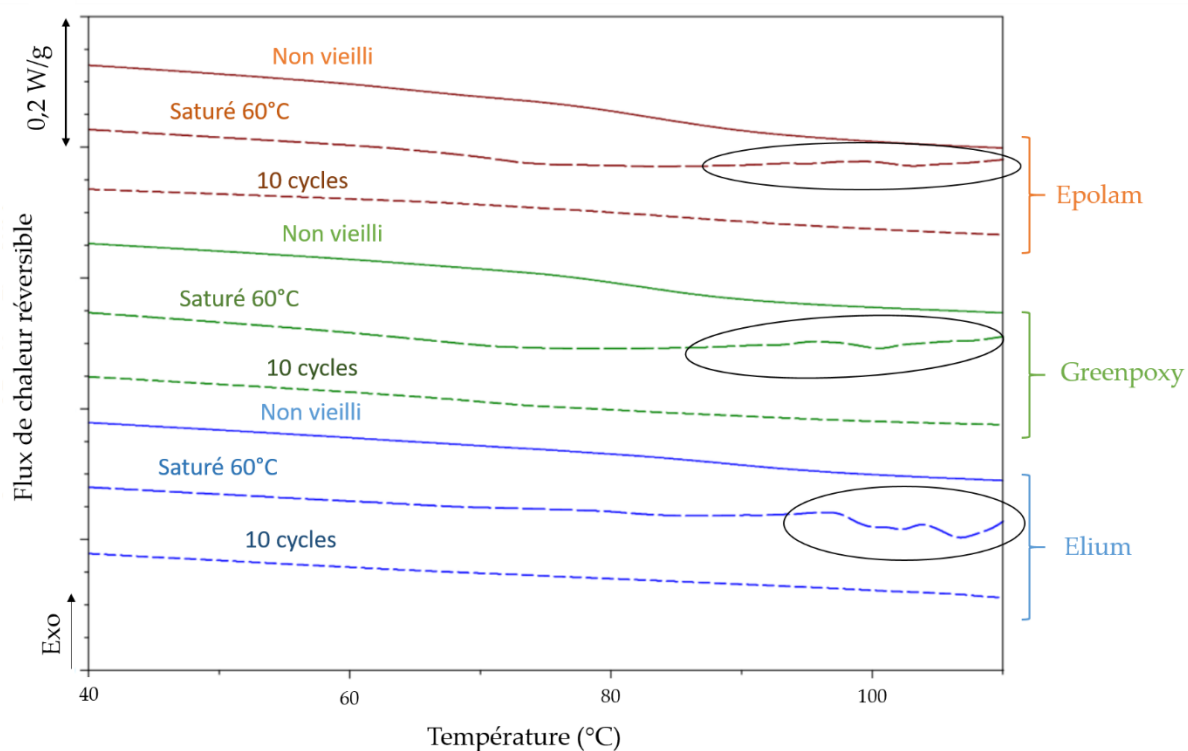


Figure V.4 Thermogrammes de DSC des biocomposites à base d'Epolam, de Greenpoxy et d'Elium pour trois conditionnements : « Non vieilli », saturé en eau à 60°C (« Saturé 60°C ») et après 10 cycles de fatigue hydrique (« 10 cycles »).

On remarque sur la Figure V.4 qu'après 10 cycles de fatigue hydrique, la variation de flux de chaleur correspondant au passage de la transition vitreuse, représentée par une « marche », est bien moins marquée que pour les composites non vieillis. Cela se remarque particulièrement sur la Figure V.4, car les courbes « 10 cycles » sont écrasées du fait de la superposition de l'ensemble des courbes à analyser. Malgré cela, une température de transition vitreuse a pu être extraite en traitant chacune des courbes une par une. Il a été observé que lorsque les matériaux étaient saturés en eau à 60°C, une zone bruitée aux alentours des 100°C apparaissait systématiquement (entourée en noir sur la Figure V.4). Cela démontre que les paramètres de DSC modulés choisis sont mieux adaptés pour des matériaux sans eau (c'est à dire non vieillis ou après i cycles de fatigue hydrique). Des valeurs ont tout de même pu être extraites des courbes de flux de chaleur des matériaux composites saturés en eau à 60°C. Le Tableau V.3 donne, pour l'ensemble des biocomposites étudiés, les valeurs de T_g^x , avec x correspondant à l'état du matériau ($x = 0$ pour l'état non vieilli, $x = 60^\circ\text{C}$ pour l'état saturé en eau à 60°C et $x = 10$ pour l'état après 10 cycles de fatigue hydrique). Les variations ΔT_g^x par rapport à l'état non vieilli sont également données dans le Tableau V.3 pour $x = 60^\circ\text{C}$ et $x = 10$.

Tableau V.3 : Températures de transition vitreuse (T_g^x) et variations par rapport à l'état non vieilli (ΔT_g^x) de l'ensemble des biocomposites étudiés mesurées par DSC après fabrication, saturation en eau à 60°C et 10 cycles de fatigue hydrique.

	Chanvre/Epolam	Chanvre/Greenpoxy	Chanvre/Elium
T_g^0 (°C)	83,0 ± 0,5	82,4 ± 0,5	91,4 ± 0,5
$T_g^{60^\circ C}$ (°C)	71,1 ± 0,5	64,9 ± 0,5	78,1 ± 0,5
$\Delta T_g^{60^\circ C}$	-14%	-21%	-14%
T_g^{10} (°C)	75,0 ± 0,5	71,2 ± 0,5	97,9 ± 0,5
ΔT_g^{10}	-9,6%	-14%	+6,6%

La plastification de la résine dans les composites saturés en eau à 60°C est mise en évidence dans le Tableau V.3 avec une perte de T_g de 14% pour les composites à base d'Epilam ou d'Elium et une perte de 21% pour le composite chanvre/Greenpoxy. On constate également que, malgré les séchages successifs, les matrices Epilam et Greenpoxy ne retrouvent pas leur T_g initiale après 10 cycles de fatigue hydrique, avec des diminutions respectives de 9,6% et 14%. Des modifications physico-chimiques non réversibles affectent donc les matrices thermodures pendant la fatigue hydrique. En revanche, dans le cas des composites chanvre/Elium, la valeur de température de transition vitreuse T_g^{10} est plus importante que celle mesurée à l'état non vieilli. Il apparaît donc que la succession des phases de séchage, qui ont lieu en étuve à 40°C, a provoqué sur le long terme un traitement thermique favorable à l'augmentation de la température de transition vitreuse de cette résine.

V.2.2 Variations dimensionnelles

V.2.2.1 Évolution de la section

À chaque début et fin de cycle i , l'épaisseur et la largeur de chaque échantillon ont été mesurées à l'aide d'un pied à coulisse afin de déterminer la section S . Comme décrit en partie II.2.2, l'épaisseur en début de cycle i et celle en fin de phase de saturation du cycle i seront notées, respectivement, e_0^i et e_∞^i . De manière analogue, l_0^i et l_∞^i représentent la largeur d'un échantillon, respectivement, avant et après la phase d'immersion du cycle de fatigue hydrique numéro i . Ces mesures permettent d'évaluer les variations de section des éprouvettes jusqu'au 20^{ème} cycle de fatigue hydrique. La Figure V.5 présente, pour les composites à renfort de chanvre, l'évolution du rapport $\Delta S/S_0^0$ en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique. Ce rapport exprime la variation de section pour un nombre de cycles de fatigue hydrique donné par rapport à la section mesurée avant le début du 1^{er} cycle de fatigue hydrique. Ainsi,

les points d'abscisse $[[1, 20]]$, nombres entiers uniquement, représentent la variation de section à la fin de chaque séchage par rapport à l'état initial, alors que les points intermédiaires (se terminant par « ,5 »), correspondent à la section du matériau saturé en eau au cycle numéro i . La Figure V.6 présente également ces variations de section par rapport à l'état initial pour les composites verre/Epolam. Dans ces deux Figures, les deux orientations de renfort ont été représentées.

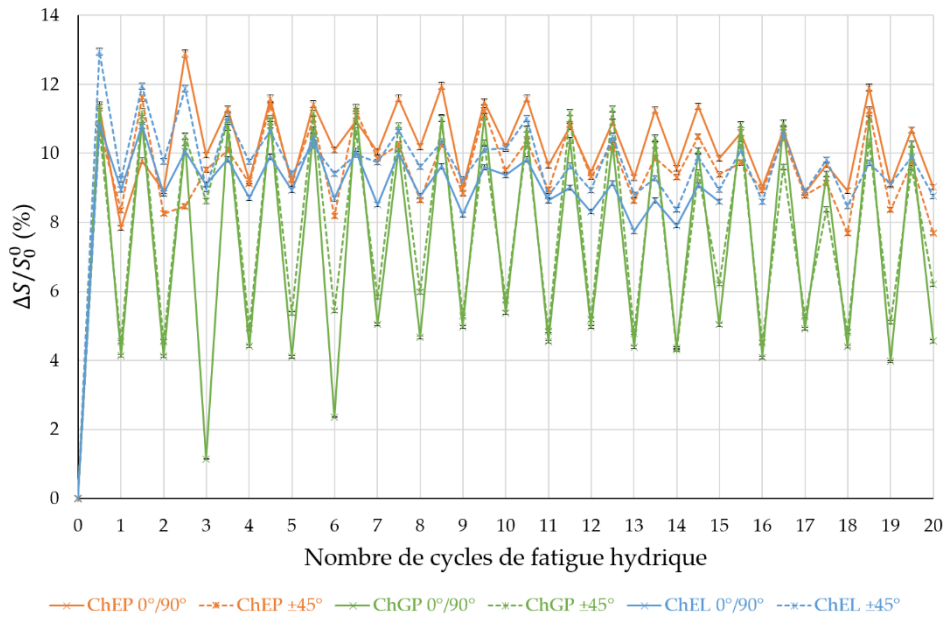


Figure V.5 : Variation relative de section par rapport à la section initiale S_0^0 pour l'ensemble des composites à renfort de chanvre, d'orientation $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$, en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique.

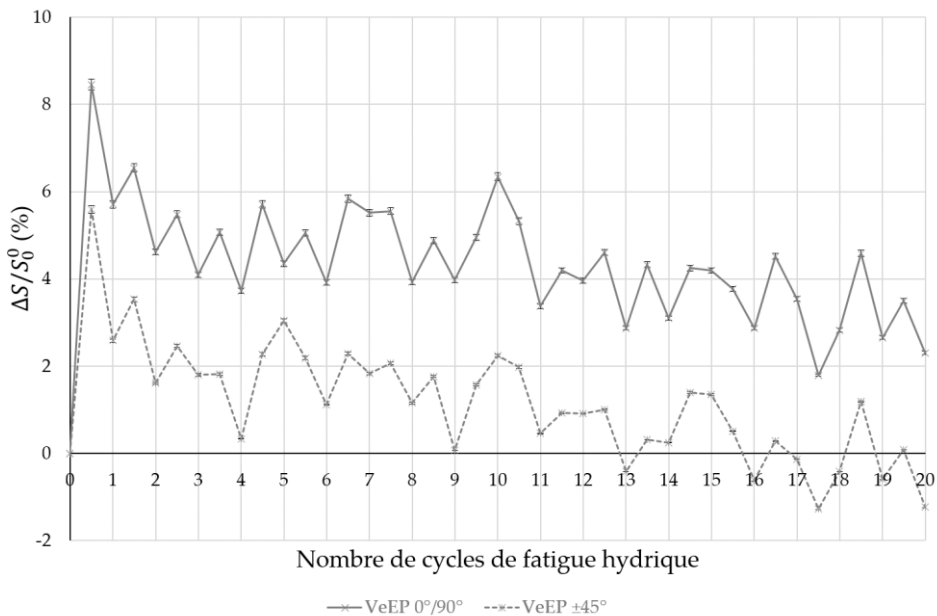


Figure V.6 : Variation relative de section par rapport à la section initiale S_0^0 pour l'ensemble des composites à renfort de verre, d'orientation $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$, en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique.

Les résultats obtenus montrent bien, pour tous les matériaux étudiés, les phénomènes de gonflement et de retrait lors de l'immersion dans l'eau puis du séchage à chaque cycle de fatigue hydrique. L'orientation des tissus dans les composites à renfort de verre semble avoir un impact sur l'évolution de la section au cours du vieillissement par fatigue hydrique (Figure V.6), contrairement à ce qui est observé pour les composites à renfort de chanvre (Figure V.5). De plus, quel que soit le matériau composite, la plus forte augmentation de section se retrouve dès le premier cycle de fatigue hydrique, à l'issue de la première phase d'immersion en eau, ce qui est en concordance avec les résultats précédents. Les composites chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy admettent une augmentation de section de l'ordre 11% dès la première saturation en eau, tandis que les composites verre/Epolam voient leur section augmenter d'environ 7%. Quant aux composites chanvre/Elium, ce sont ceux qui ont une variation de section la plus importante dès le premier cycle de fatigue hydrique : +13%. Ensuite, pendant la fatigue hydrique, les composites chanvre/Greenpoxy admettent la plus forte amplitude de variation de section, de 4% aux états secs à 11% aux états saturés en eau. Dans le cas des composites chanvre/Epolam, les oscillations sont de plus faible amplitude, centrées autour de la valeur de 10% et variant de 8% à 12%. Après le 20^{ème} cycle de fatigue hydrique, les composites chanvre/Epolam et chanvre/Elium gagnent environ 9% en section, alors que le chanvre/Greenpoxy gagne seulement 6%. En ce qui concerne la section des composites à renfort de verre, elle augmente de 2,5% pour l'orientation 0°/90° et elle diminue de 1% pour celle à ±45°. Ces résultats montrent que des endommagements et/ou des gonflements irréversibles ont été créés lors de la fatigue hydrique dans les biocomposites, ce qui augmente leur section, ce qui n'est pas le cas (ou très peu) dans les composites à fibres de verre.

V.2.2.2 Gonflement dans l'épaisseur

La valeur du gonflement dans l'épaisseur, noté g_i , a été calculée pour chaque cycle de fatigue i , suivant l'équation V.1 :

$$g_i = e_{\infty}^i - e_0^i \quad (\text{V.1})$$

avec e_{∞}^i l'épaisseur d'un échantillon saturé en eau à la fin de la phase d'immersion du $i^{\text{ème}}$ cycle de fatigue hydrique et e_0^i l'épaisseur de ce même échantillon au début du $i^{\text{ème}}$ cycle de fatigue hydrique. Les résultats obtenus pour tous les composites étudiés sont présentés dans la Figure V.7. Seules les valeurs pour l'orientation à ±45° ont été reportées, mais les mêmes courbes ont été obtenues pour les renforts orientés à 0°/90°.

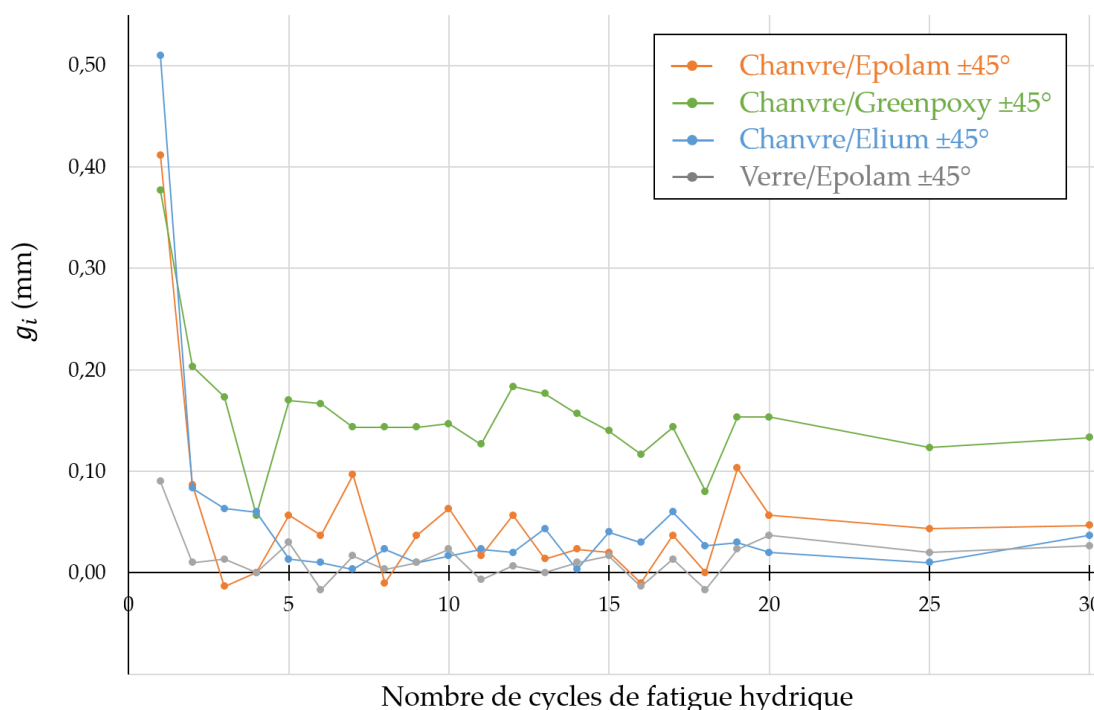


Figure V.7 : Gonflement g_i dans l'épaisseur des composites $\pm 45^\circ$ en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique i .

On observe sur la Figure V.7 que, pour tous les matériaux, la principale modification en épaisseur est observée dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique. Les composites à renfort de chanvre et à matrice thermosure admettent un gonflement au 1^{er} cycle de fatigue hydrique de l'ordre de 0,39 mm, représentant une augmentation par rapport à l'épaisseur avant fatigue hydrique d'environ 11%. Le gonflement lors du premier cycle de fatigue hydrique pour les composites chanvre/Elium s'élève à 14% par rapport à l'épaisseur initiale. Ce sont les composites verre/Epilam qui gonflent le moins : une augmentation d'environ 0,1 mm est observée à l'issue de la 1^{ère} phase de saturation en eau, représentant une variation de 6% d'épaisseur. Conformément à ce qui a été vu Figure V.6, c'est le chanvre/Greenpoxy qui connaît les gonflements les plus importants tout au long du vieillissement par fatigue hydrique.

La Figure V.8 montre sous forme d'histogramme la valeur du gonflement après la phase d'immersion du cycle 1 et la valeur du gonflement moyennée sur les cycles 2 à 30 pour l'ensemble des composites ($\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$ confondus). Cette Figure permet de mettre en exergue le fait que le 1^{er} cycle de fatigue hydrique est celui qui modifie le plus la géométrie des échantillons. Toutefois, des différences peuvent être observées d'un matériau à l'autre. Si le gonflement des échantillons chanvre/Epilam, chanvre/Elium et verre/Epilam est considérablement réduit dès le deuxième cycle, les composites chanvre/Greenpoxy admettent encore des gonflements importants tout au long du vieillissement par fatigue hydrique (0,14 mm en moyenne pour i allant de 2 à 30).

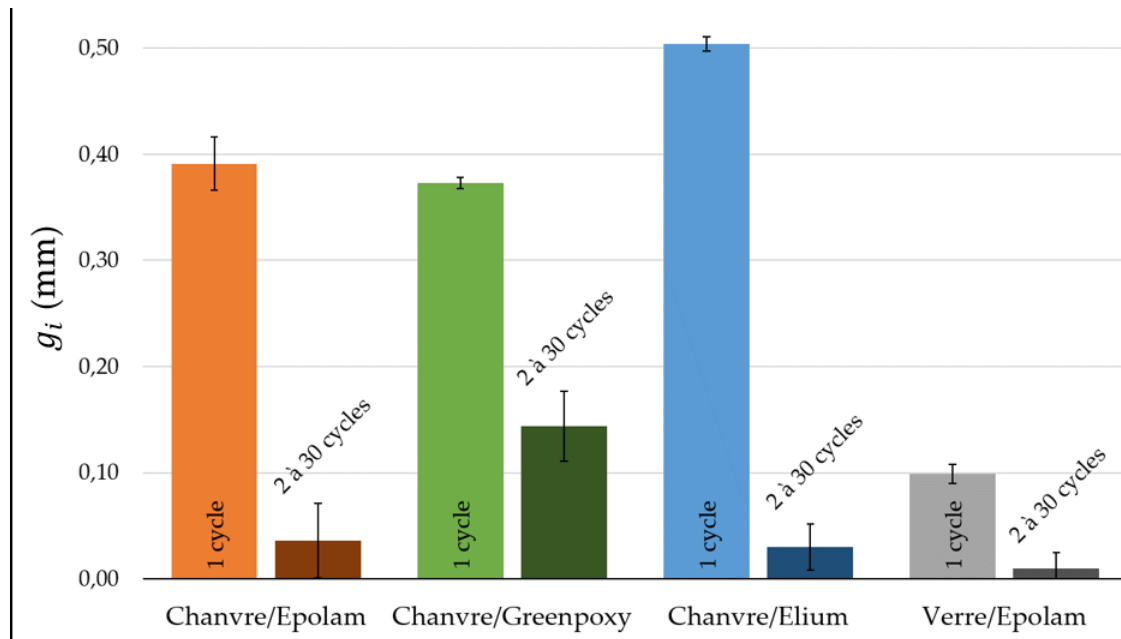


Figure V.8 : Gonflement dans l'épaisseur g_i pour $i = 1$ et moyenné pour $i \in \llbracket 2, 30 \rrbracket$ de l'ensemble des composites tissés ($\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$).

V.2.3 Lien entre variation dimensionnelle et coefficient de diffusion

Les Figures V.9 et V.10 permettent de visualiser, pour les composites à renfort de chanvre et de verre respectivement, l'évolution des épaisseurs des échantillons en début de chaque cycle de fatigue hydrique, e_0^i , en fonction des coefficients de diffusion de Fick D_i du cycle considéré. Le nombre de cycles est représenté du plus foncé pour les faibles valeurs de nombre de cycles, au plus clair pour les grandes valeurs allant jusqu'à 30 cycles de fatigue hydrique.

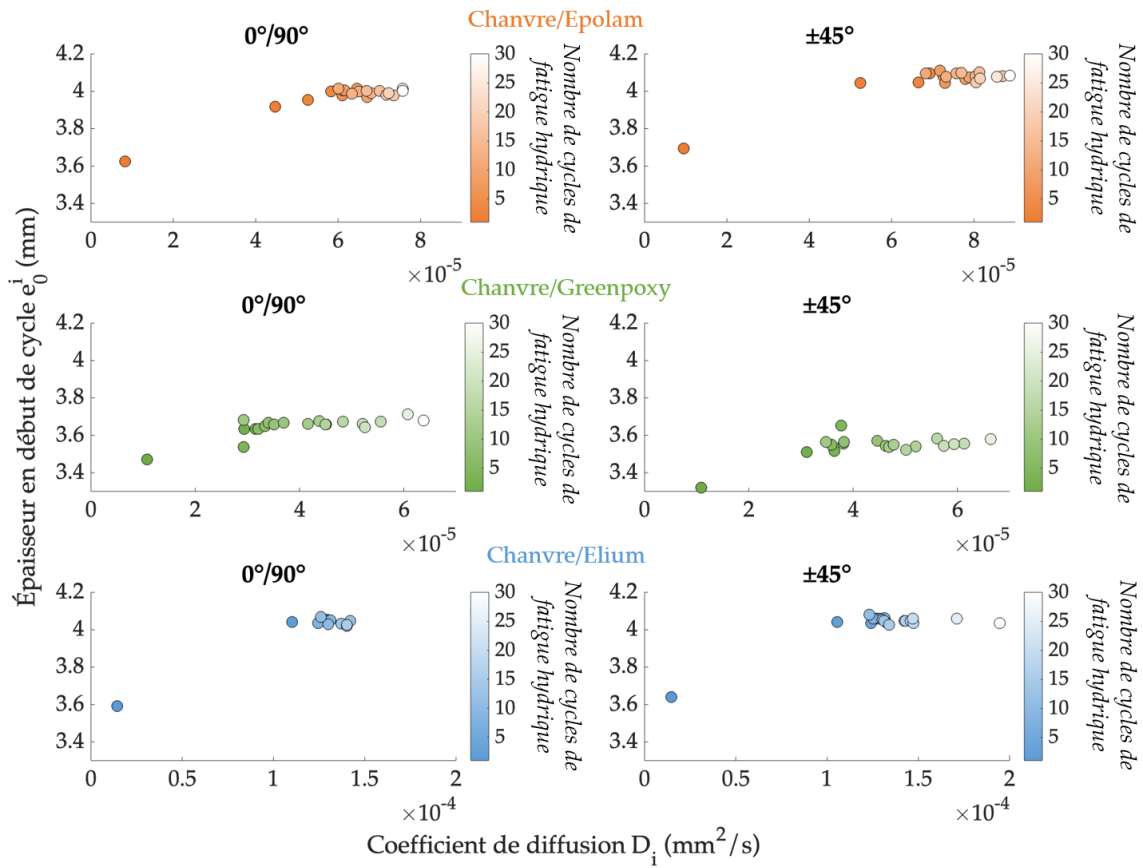


Figure V.9 : Épaisseur en début de cycle e_0^i en fonction du coefficient de diffusion de Fick D_i pour différents nombres de cycles de fatigue hydrique pour les composites à renfort de chanvre à 0°/90° et à ±45°.

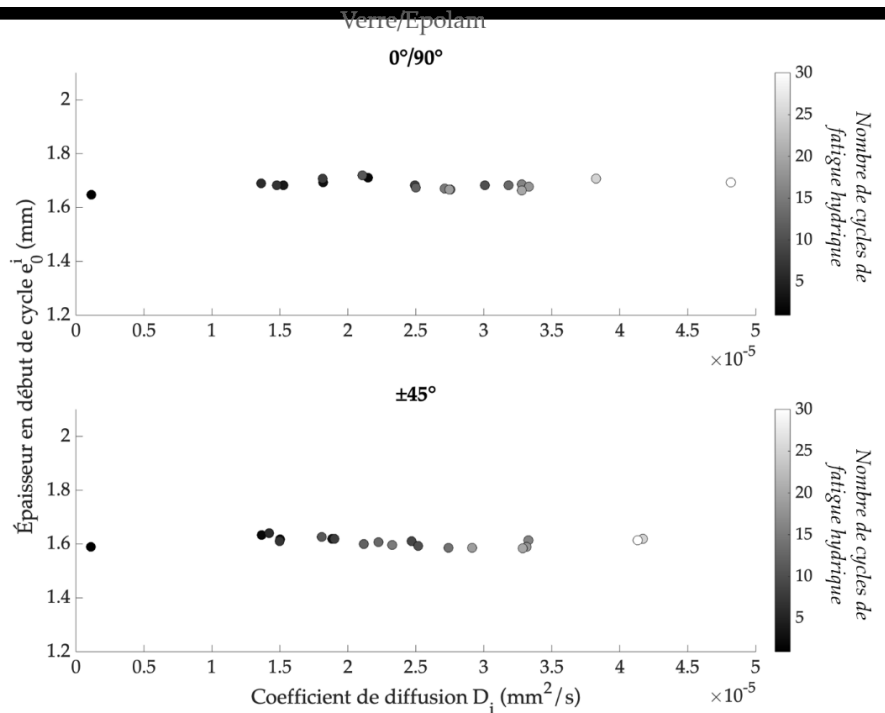


Figure V.10 : Épaisseur en début de cycle e_0^i en fonction du coefficient de diffusion de Fick D_i pour différents nombres de cycles de fatigue hydrique pour le verre/Epolam à 0°/90° et à ±45°.

Pour les composites à renfort de chanvre, quelle que soit l'orientation du tissu, la Figure V.9 montre qu'il y a un lien entre l'épaisseur en début de cycle de fatigue hydrique et le coefficient de diffusion induit. En effet, plus l'épaisseur des échantillons avant chaque cycle est grande, plus le coefficient de diffusion de l'eau est élevé. Cela pourrait s'expliquer par la présence d'endommagements dans les échantillons, ce qui augmenterait leur épaisseur et faciliterait l'absorption d'eau. Dans ces travaux, Newman [78] a justement fait le lien entre la présence de porosités suite à un certain nombre de cycles de fatigue hydrique et l'augmentation du coefficient de diffusion de Fick mesuré à chaque cycle de fatigue hydrique pour des composites tissés lin/époxy (Figure I.22). En revanche, cette tendance ne se retrouve pas dans le cas des composites verre/Epolam (Figure V.10), pour lesquels les variations d'épaisseur - beaucoup plus faibles - paraissent décorréliées des variations du coefficient de diffusion. On peut donc faire l'hypothèse que, dans le cas du verre/Epolam, il n'y a pas (ou très peu) de création de porosités au cours de la fatigue hydrique, la cinétique d'absorption d'eau reste donc pilotée par l'absorption dans la matrice et non pas par la présence d'endommagement.

V.3 Effet de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique des composites

Dans cette partie est présentée l'évolution au cours de la fatigue hydrique des paramètres caractéristiques en traction pour l'ensemble des composites tissés ($0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$). Des essais de traction après fatigue thermique sont également réalisés afin de découpler les effets de l'eau de ceux de la température. Enfin, les évolutions des modules sécants en cours de sollicitation mécanique après fatigue hydrique seront également présentées.

V.3.1 Comportement en traction

La Figure V.11 présente, pour tous les composites étudiés, des exemples de courbes de traction obtenues après 1, 10, 15 (pour les composites chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$) et 30 cycles de fatigue hydrique. Les courbes annotées « Amb » correspondent aux éprouvettes non vieilles (vues en chapitre III). Les résultats montrent que, quels que soient le matériau et l'orientation du composite, un cycle de fatigue hydrique modifie déjà considérablement le comportement mécanique. Augmenter le nombre de cycles de fatigue hydrique accentue ces modifications mais dans une moindre mesure. Ainsi, l'écart entre les courbes des échantillons non vieillis et des échantillons après 1 cycle de fatigue est nettement plus prononcé que l'écart entre les courbes obtenues après 1 ou 30 cycles.

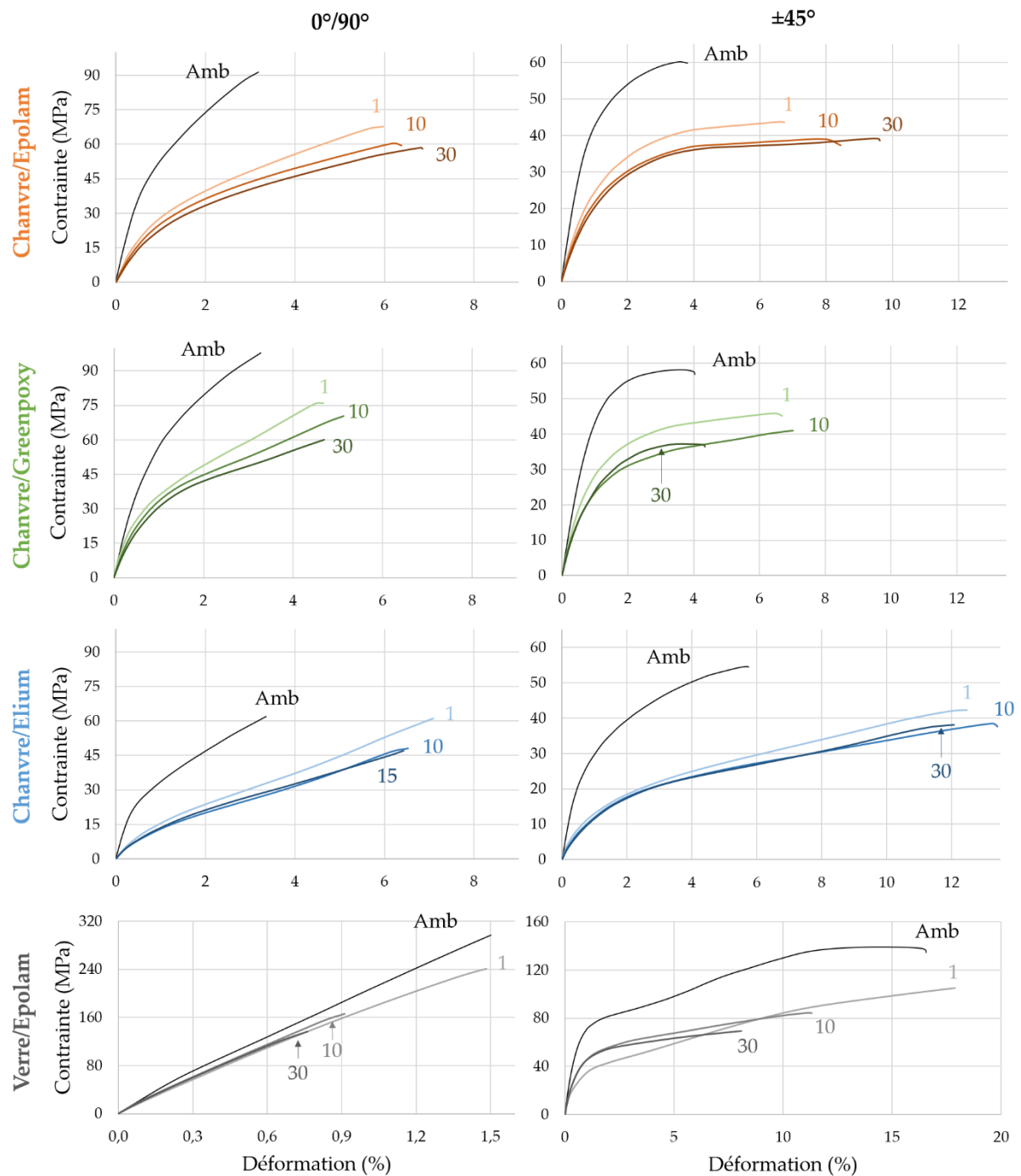


Figure V.11 : Courbes de traction des composites tissés d'orientation $0^\circ/90^\circ$ (colonne de gauche) et $\pm 45^\circ$ (colonne de droite) non vieillis (« Amb ») et après 1, 10 et 30 cycles de fatigue hydrique (15 pour les composites chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$).

Pour analyser les modifications des propriétés en traction au cours de la fatigue hydrique, les variations des grandeurs caractéristiques par rapport à celles des matériaux non vieillis ont été calculées. L'évolution du module d'Young normé E_0^i/E_0^0 , où E_0^i est le module d'Young mesuré après i cycles de fatigue hydrique et E_0^0 le module d'Young des échantillons non vieillis, est présentée en Figure V.12a pour les composites à renfort de chanvre uniquement et en

Figure V.12b pour tous les composites. De la même manière, les Figures V.12c et V.12d présentent l'évolution de la contrainte maximale normée σ_m^i/σ_m^0 atteinte par l'ensemble des composites, avec i allant de 0 (état « non vieilli ») à 30. Enfin, les Figures V.12e et V.12f présentent l'évolution de la déformation à rupture normée $\epsilon_r^i/\epsilon_r^0$ des composites à renfort de chanvre (Figure V.12e) et des composites à renfort de chanvre et de verre (Figure V.12f).

Les résultats montrent que la tendance générale est assez similaire pour tous les biocomposites et que l'évolution des propriétés de traction ne dépend pas de l'orientation du renfort. Le module d'Young chute au 1^{er} cycle de fatigue hydrique, continue à diminuer légèrement lorsque le nombre de cycles augmente puis se stabilise (Figure V.12a). La résistance en traction évolue de la même manière, sauf pour le chanvre/Elium 0°/90°, pour lequel elle ne diminue qu'au 5^{ème} cycle (Figure V.12c). La déformation à la rupture augmente significativement au premier cycle puis se stabilise (Figure V.12e). En regardant de plus près les courbes d'évolution, on constate qu'il y a quelques différences en fonction de la résine utilisée. La Figure V.12a montre que la stabilisation du module d'Young intervient plus tôt pour les composites chanvre/Elium et chanvre/Epalam que pour les éprouvettes chanvre/Greenpoxy (après 5 cycles contre 20). Cependant, après 30 cycles de fatigue hydrique, la perte de rigidité est significativement plus élevée pour les matériaux chanvre/Elium et chanvre/Epalam (65% et 55% de perte, respectivement) que pour les échantillons chanvre/Greenpoxy (35% de perte). Pour la résistance en traction, la perte après 30 cycles est sensiblement la même pour tous les composites à renfort de chanvre : environ 37% (Figure V.12c). La Figure V.12e montre également une différence en fonction de la résine. Après 30 cycles de fatigue hydrique, la déformation à la rupture est multipliée par 2,3 pour les composites chanvre/Elium et chanvre/Epalam et seulement par 1,2 pour le chanvre/Greenpoxy. Les composites chanvre/Greenpoxy admettent donc de plus petites variations en termes de propriétés mécaniques en traction après 30 cycles de fatigue hydrique que les composites chanvre/Epalam et chanvre/Elium. Ceci est cohérent avec les variations plus faibles du coefficient de diffusion de Fick et du taux d'absorption à saturation mesurées pour les composites chanvre/Greenpoxy en comparaison avec les autres biocomposites (Figures V.2 et V.3).

Dans la littérature, il n'y a pas d'études comparables avec la matrice Greenpoxy, mais certains articles traitent de composites lin/époxy ou lin/Elium soumis à des cycles de fatigue hydrique. Mak et Fam [82] ont travaillé sur des échantillons unidirectionnels lin/époxy, immergés dans l'eau à 23°C pendant 23 jours et séchés à 60°C pendant 5 jours, en répétant ce cycle 12 fois (Tableaux I.3 et IV.2). Ils observent une légère diminution du module d'Young et de la contrainte maximale après fatigue hydrique, de respectivement 20% et 12% (Figure I.25). Deux raisons peuvent expliquer ces pertes de faibles amplitudes par rapport aux valeurs obtenues dans ce travail de thèse : les étapes d'immersion ont eu lieu à température ambiante et n'ont probablement pas permis d'atteindre la saturation en eau à chaque cycle et le renforcement était unidirectionnel. De la même manière, Cadu *et al.* [84] ont relevé de faibles pertes en rigidité et en contrainte maximale, de respectivement 10% et 14% (Figure I.29) mais la phase

d'absorption qu'ils ont appliquée (90% HR, 55°C, 3,5 jours) n'était sans doute pas suffisante pour atteindre la saturation en eau à chaque cycle de fatigue hydrique. En revanche, ce sont les résultats de l'étude de Freund [81] sur un composite tissé lin/époxy qui se rapprochent le plus des nôtres. En effet, il a mesuré de plus importantes pertes de module d'Young et de contrainte maximale, de l'ordre de 30% et 55%, respectivement. Ce sont des valeurs plus proches de celles qui ont été relevées dans le cadre de cette thèse. Cela s'explique par le fait que dans son étude, Freund a choisi les durées des cycles de fatigue hydrique pour systématiquement atteindre la saturation en eau. Ces comparaisons confirment donc que les paramètres de fatigue hydrique choisis pour cette thèse permettent de déterminer les pertes maximales possibles et ainsi de fournir les données nécessaires pour concevoir des structures soumises à n'importe quelle condition de fatigue hydrique.

Concernant les composites à renfort de verre, le module d'Young chute dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique, comme observé pour les composites à renfort de chanvre (Figure IV.12b). Après 30 cycles de fatigue hydrique, le module d'Young des composites verre/Epilam 0°/90° a perdu 15% contre 30% pour les verre/Epilam ±45°. L'abaissement plus important du module d'Young pour les composites verre/Epilam ±45° s'explique par le fait que l'interface fil/matrice et la matrice elle-même sont plus sollicitées que dans le cas des composites 0°/90°. Dans ces derniers, ce sont les fibres orientées dans la direction de traction qui rigidifient le matériau composite. Les fibres de verre ne se dégradant pas pendant la fatigue hydrique, elles conservent leur performance en termes de rigidité.

La Figure IV.12d montre que la contrainte à rupture des composites verre/Epilam chute d'environ 20% dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique, quelle que soit l'orientation des renforts. La diminution se poursuit quasi-linéairement sans atteindre d'asymptote en fin de fatigue hydrique. Les pertes de contrainte maximale atteintes par les composites verre/Epilam après 30 cycles de fatigue hydrique se situent entre 50% et 55% de la valeur obtenue pour les matériaux non vieillis, ce qui est significativement supérieur aux pertes atteintes par les composites à renfort de chanvre. Cela montre donc que, de ce point de vue, les biocomposites sont moins impactés par la fatigue hydrique que les composites à renfort de verre.

De plus, la fatigue hydrique a tendance à diminuer la déformation à rupture des composites verre/Epilam (Figure V.12f). En effet, pour les deux orientations, les valeurs de déformation à rupture des composites verre/Epilam sont divisées par 2 après 30 cycles de fatigue hydrique, alors que les biocomposites voient leur déformation à rupture augmenter.

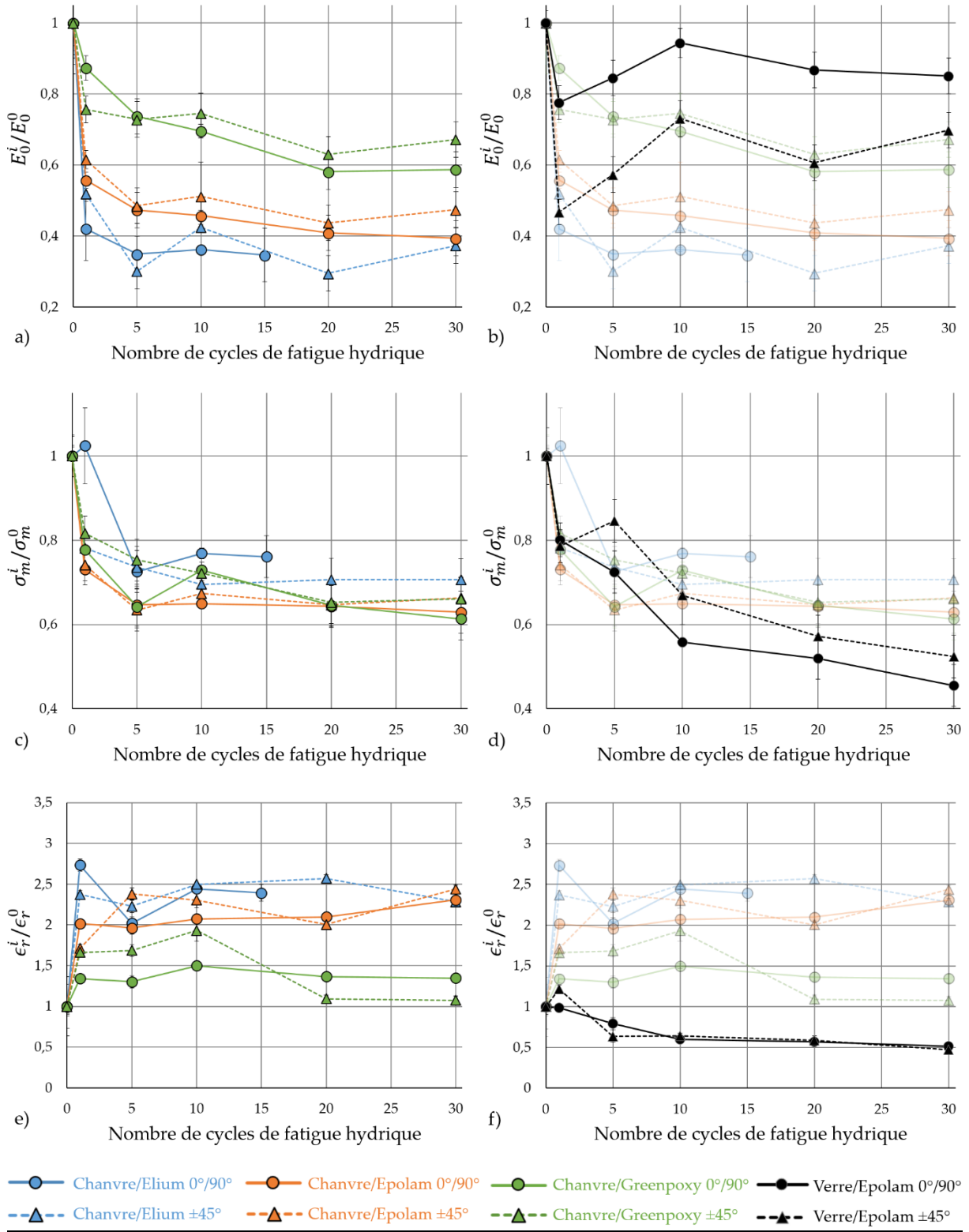


Figure V.12 : Évolution des propriétés mécaniques en traction en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique pour tous les composites étudiés : a) module d'Young, c) contrainte maximale et e) déformation à rupture des composites à renfort de chanvre et b), d) et f) de l'ensemble des composites, verre/Epolam compris.

V.3.2 Comparaison avec la fatigue thermique

Cette partie a pour but de déterminer si les dégradations des propriétés mécaniques observées après fatigue hydrique sont dues aux phases d'immersion-séchage successives ou simplement aux variations de température pendant celles-ci. Pour cela, des cycles de fatigue dite thermique ont été appliqués à certains composites tissés, en fonction des différents stocks restants. Ainsi, de manière analogue à la fatigue hydrique, les composites disponibles ont été soumis à 9 cycles de fatigue thermique consistant en une première phase dans une étuve chauffée à 60°C pendant 12 jours, sans eau, et une deuxième phase dans une étuve à 40°C pendant 2 jours. Seule l'eau a donc été retirée par rapport aux cycles de fatigue hydrique. Par manque de temps, il n'a pas été possible d'atteindre 10 cycles de fatigue thermique. Cependant, en supposant que l'effet d'un 10^{ème} cycle thermique sur les propriétés mécaniques des composites est négligeable, les résultats de cette partie permettront de comparer les trois états suivants : non vieilli (résultats de la partie III), 10 cycles de fatigue hydrique et 9 cycles de fatigue thermique.

Des essais de traction ont ainsi été effectués après fatigue thermique sur des composites chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$, chanvre/Greenpoxy $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$, chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ et verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$. La Figure V.13 présente les courbes contrainte-déformation obtenues, comparées à celles des matériaux non vieillis ou vieillis par 10 cycles de fatigue hydrique.

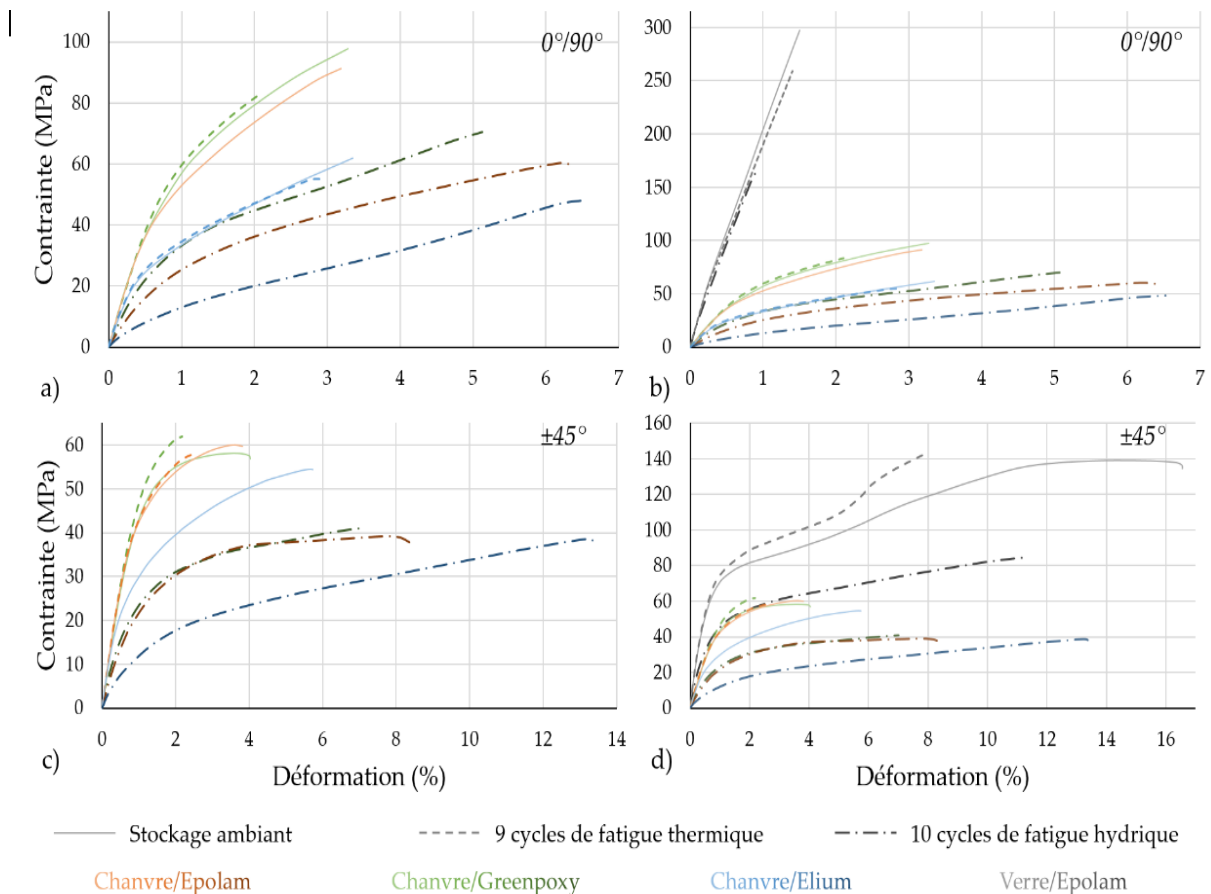


Figure V.13 : Courbes contrainte-déformation des composites tissés non vieillis, après 9 cycles de fatigue thermique et après 10 cycles de fatigue hydrique, d'orientation 0°/90° et ±45° a) et c) à renfort de chanvre et b) et d) à renfort de chanvre et de verre.

Les résultats montrent que les courbes contrainte-déformation obtenues après fatigue thermique sont très proches de celles obtenues sur les matériaux non vieillis. Cependant, il apparaît que les composites vieillis par 9 cycles de fatigue thermique admettent un domaine plastique réduit par rapport à l'état non vieilli. Le Tableau V.4 permet d'analyser les valeurs de module d'Young et de contrainte maximale après fatigue hydrique ou thermique. Les variations des valeurs mesurées après vieillissement par rapport à l'état non vieilli Δ_{Amb}^x ont été calculées (avec $x = Hydrique$ pour les éprouvettes ayant subi 10 cycles de fatigue hydrique et $x = Thermique$ pour celles ayant subi 9 cycles de fatigue thermique). On peut voir dans ce Tableau que la fatigue thermique n'a pas d'influence sur le module d'Young des composites, et ce, quelle que soit l'orientation des renforts, les variations observées étant négligeables par rapport à la dispersion des mesures du module. Les pertes importantes de module relevées après 10 cycles de fatigue hydrique sont donc bien dues à la présence de l'eau durant les phases d'immersion.

Concernant la contrainte maximale après fatigue thermique, les résultats montrent que, pour les composites ±45°, les petites variations observées par rapport aux matériaux non vieillis sont également inférieures ou du même ordre de grandeur que la dispersion des mesures. Par contre, la fatigue thermique a une influence plus marquée dans le cas des composites à renfort

d'orientation 0°/90°. En effet, la perte de contrainte à rupture observée après fatigue thermique sur ces matériaux se situe entre 11% pour les composites chanvre/Elium et 14% à 15% pour, respectivement, les composites verre/Epilam et chanvre/Greenpoxy. Cependant, dans tous les cas, les pertes de contraintes maximales mesurées après fatigue hydrique sont nettement supérieures à celles obtenues après fatigue thermique, montrant là encore le rôle prépondérant de l'eau.

Tableau V.4 : Module d'Young et contrainte maximale des composites tissés soumis à 10 cycles de fatigue hydrique ou à 9 cycles de fatigue thermique et variations par rapport à l'état « non vieilli ».

		Module d'Young				Contrainte maximale			
		10 cycles hydriques		9 cycles thermiques		10 cycles hydriques		9 cycles thermiques	
		Valeur (GPa)	$\Delta_{Amb}^{Hydrique}$	Valeur (GPa)	$\Delta_{Amb}^{Thermique}$	Valeur (MPa)	$\Delta_{Amb}^{Hydrique}$	Valeur (MPa)	$\Delta_{Amb}^{Thermique}$
ChEP	0°/90°	4,0 ± 0,1	-54%	-	-	60 ± 2	-35%	-	-
	±45°	3,3 ± 0,3	-49%	6,4 ± 0,5	-0,1%	40 ± 1	-33%	58 ± 2	-1%
ChGP	0°/90°	6,2 ± 0,1	-31%	8,3 ± 0,3	-6,6%	71 ± 2	-27%	83 ± 2	-15%
	±45°	4,5 ± 0,3	-26%	6,4 ± 0,4	+5,4%	41 ± 1	-28%	62 ± 2	+7%
ChEL	0°/90°	2,5 ± 0,1	-64%	7,6 ± 0,3	+9,7%	48 ± 1	-23%	55 ± 1	-11%
	±45°	2,3 ± 0,1	-58%	-	-	38 ± 1	-30%	-	-
VeEP	0°/90°	24,6 ± 1,0	-6%	24,9 ± 1,1	-4,7%	168 ± 2	-44%	259 ± 6	-14%
	±45°	10,7 ± 0,5	-27%	14,0 ± 0,7	-4,8%	89 ± 6	-33%	143 ± 4	+ 8%

Enfin, la Figure V.14 permet de comparer les déformations à rupture pour les états suivants et dans cet ordre : 9 cycles de fatigue thermique, non vieilli, 10 cycles de fatigue hydrique et saturé en eau à 60°C.

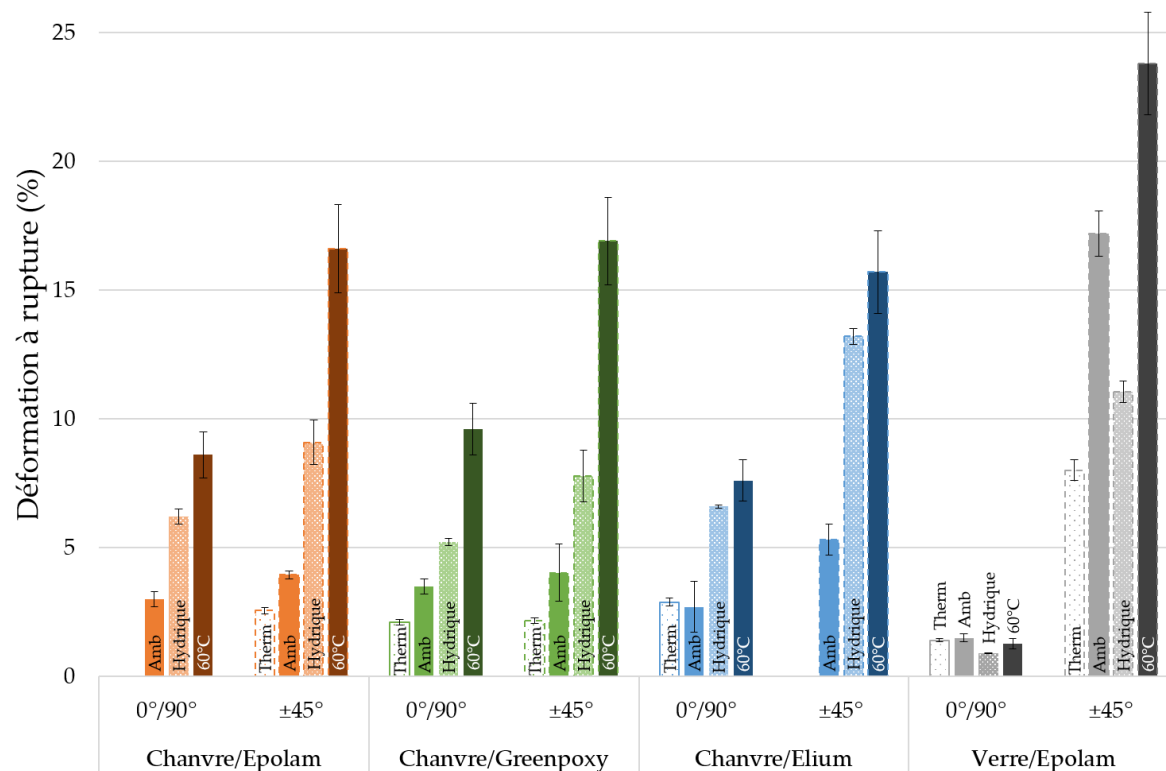


Figure V.14 : Comparaison des valeurs de déformation à rupture des composites tissés après 9 cycles de fatigue thermique, non vieillis, après 10 cycles fatigue hydrique et saturés en eau à 60°C.

Les résultats montrent que, pour tous les matériaux, les déformations à rupture des composites après fatigue thermique sont inférieures ou égales à celles obtenues après stockage ambiant. Cela s'explique par le fait que lors du stockage à température et humidité ambiantes, les éprouvettes de composites peuvent absorber un peu d'eau, entraînant ainsi une légère plastification de la matrice et donc un allongement un peu plus important à rupture. À l'opposé, la fatigue thermique permet de s'affranchir totalement des effets de plastification, les matériaux étant longuement séchés. Ce phénomène peut également expliquer les diminutions de contrainte à rupture observées dans le Tableau V.4 : les déformations à rupture étant limitées, les contraintes ne peuvent pas atteindre les mêmes valeurs que dans les matériaux non vieillis.

En ce qui concerne les déformations à rupture après fatigue hydrique, celles-ci sont bien supérieures à celles obtenues à l'état non vieilli et *a fortiori* à celles mesurées après fatigue thermique. Ces forts allongements à rupture ne peuvent pas s'expliquer par la présence d'eau dans les matériaux puisqu'une phase de séchage, en fin de fatigue hydrique, précède toujours les essais mécaniques contrairement à l'état saturé en eau à 60°C. Ainsi, dans le cas de la fatigue hydrique, l'augmentation de la déformation à rupture s'explique par la présence d'endommagements créés pendant la fatigue hydrique, et non pas par la plastification par l'eau de la matrice.

Pour conclure, ces résultats montrent que les variations des propriétés mécaniques observées après fatigue hydrique sont bien essentiellement dues à la succession de phases d'immersion-séchage et non pas aux variations de température entre celles-ci.

V.3.3 Évolution du module sécant

Des essais de traction à chargements répétés progressifs ont également été réalisés sur les composites ayant subi de la fatigue hydrique afin de pouvoir suivre l'évolution des modules sécants. Pour chaque cycle de fatigue hydrique i , l'évolution du module sécant $E_{\sigma_n}^i$ normé par le module d'Young E_0^i est présentée Figure V.15 pour les composites à renfort de chanvre et Figure V.16 pour les composites à renfort de verre. Des comparaisons sont effectuées avec les courbes obtenues pour les composites non vieillis ou ayant subi 9 cycles de fatigue thermique.

Tout d'abord, les courbes obtenues pour les composites à renfort de chanvre ayant subi 9 cycles de fatigue thermique montrent que les évolutions du module sécant sont similaires ou ralenties par rapport à celles des composites non vieillis (Figures V.15). Ce ralentissement est surtout visible pour les deux orientations du chanvre/Greenpoxy, qui est donc le matériau le plus sensible à la fatigue thermique. Cependant, là encore, les résultats montrent que les variations obtenues après fatigue hydrique ne sont pas provoquées par les variations de température, qui provoquent au contraire des effets inverses.

En effet, après fatigue hydrique et dès le premier cycle, on observe pour tous les composites à renforts de chanvre une accélération de la chute du module sécant au cours de la traction par rapport aux matériaux non vieillis : le module sécant commence à diminuer plus tôt et sa baisse est plus rapide. L'augmentation du nombre de cycles de fatigue hydrique ne modifie pas ou peu cette tendance. Ce phénomène d'accélération est particulièrement marqué pour le chanvre/Elium, avec une chute du module sécant dès le début de la traction, quelle que soit l'orientation du composite (Figure V.15).

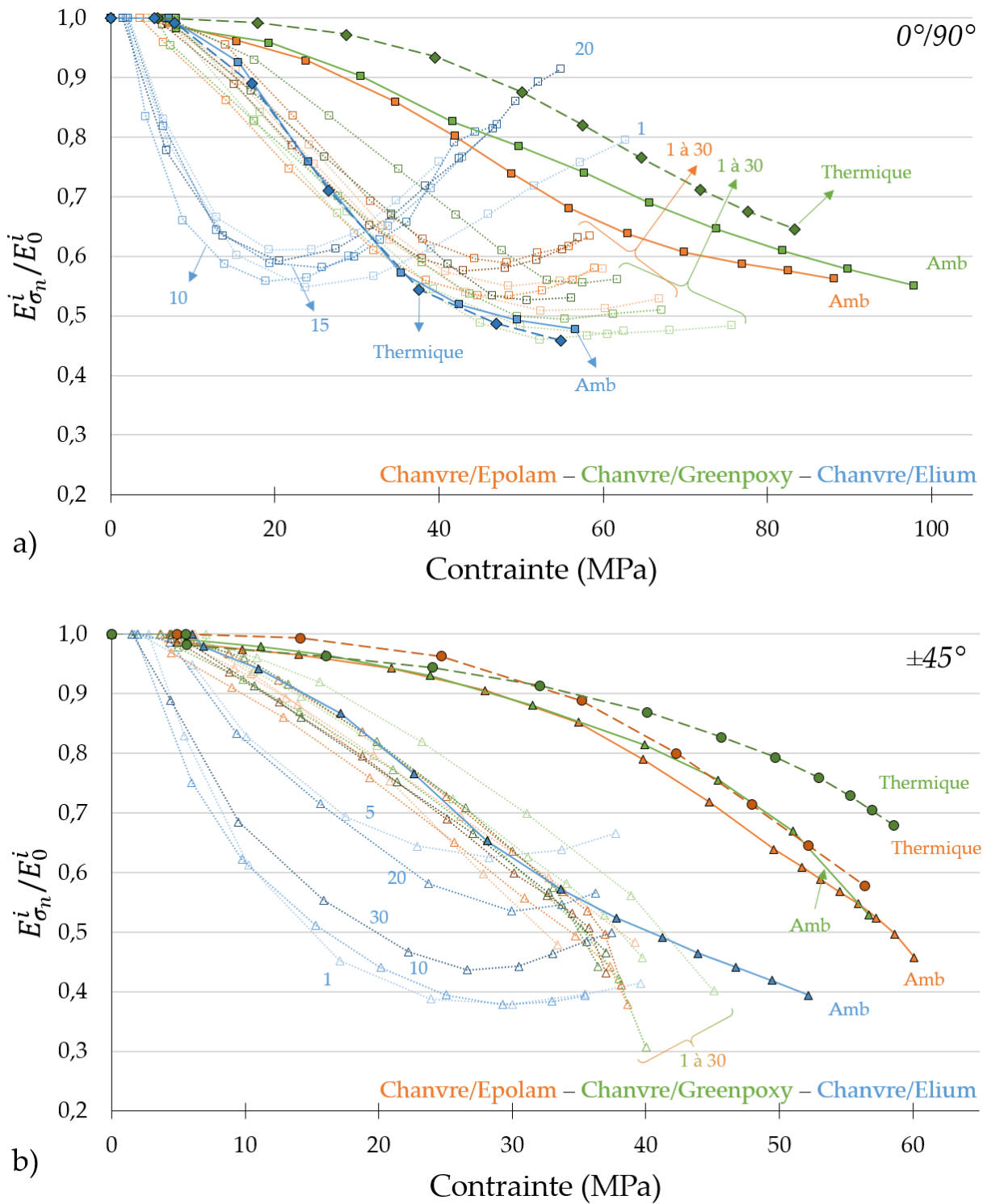


Figure V.15 : Module sécant $E_{\sigma_n}^i$ normé par le module d'Young E_0^i en fonction de la contrainte appliquée pour les composites à renfort de chanvre non vieillis ($i = 0$), après i ($i \geq 1$) cycles de fatigue hydrique et après 9 cycles de fatigue thermique, pour l'orientation a) $0^\circ/90^\circ$ et b) $\pm 45^\circ$.

Pour les composites à renfort de chanvre orienté à $0^\circ/90^\circ$ (Figure V.15a), on observe, lorsque la contrainte appliquée augmente, un changement de courbure suivi d'une croissance du module sécant, comme cela avait été observé dans le cas des échantillons saturés en eau

(Figure IV.9a). Le changement de courbure intervient pour différents niveaux de contrainte appliquée selon la matrice considérée. Pour le chanvre/Elium, ce changement a lieu dès 20MPa, laissant ensuite le temps au module sécant d'augmenter de manière significative. Pour les composites à matrice thermodule, le changement de courbure se produit vers 50 MPa et la hausse du module en fin d'essai est donc plus limitée. Ainsi, juste avant la rupture en traction, le chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ a un module sécant égal à 90% de son module d'Young après 20 cycles de fatigue hydrique. Les valeurs de module sécant normé obtenues pour les composites chanvre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ et chanvre/Greenpoxy $0^\circ/90^\circ$ se situent quant à elles entre 50% et 65% après fatigue hydrique.

Dans le cas des composites à renfort de chanvre orienté à $\pm 45^\circ$ (Figure V.15b), le changement de courbure après fatigue hydrique apparaît plus tardivement, vers 30 MPa, et seulement pour les composites chanvre/Elium $\pm 45^\circ$. Les composites chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy à $\pm 45^\circ$ présentent une cinétique d'endommagement accélérée par rapport à l'état non vieilli, mais ne présentent pas une augmentation de module sécant.

Le chapitre suivant s'intéressera notamment aux mécanismes mis en jeu afin d'expliquer ces évolutions du module en fin d'essai de traction.

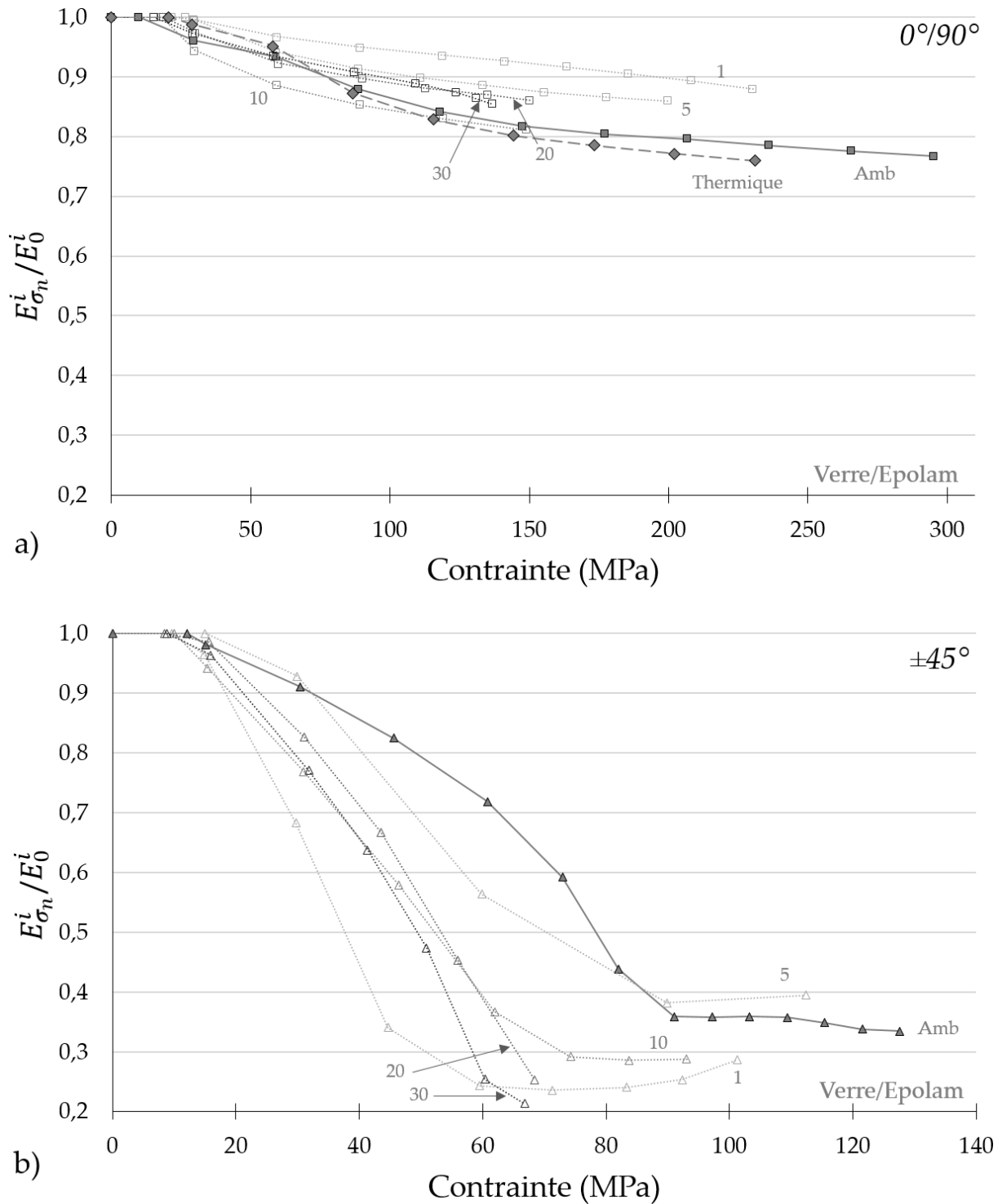


Figure V.16 : Module sécant $E_{\sigma_n}^i$ normé par le module d'Young E_0^i en fonction de la contrainte appliquée pour les composites verre/Epolam non vieillis ($i = 0$), après i ($i \geq 1$) cycles de fatigue hydrique et après 9 cycles de fatigue thermique, pour l'orientation a) $0^\circ/90^\circ$ et b) $\pm 45^\circ$.

Dans le cas des composites verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ (Figure V.16a), au vu des faibles variations de module sécant et du comportement fragile de ce type de composite, il est difficile de conclure sur des éventuelles influences du vieillissement. On peut cependant noter qu'après 30 cycles

de fatigue hydrique, le verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ perd 15% de son module sécant en fin de traction, alors que le chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ ne perd que 10% (Figure V.15a).

Pour les composites verre/Epolam $\pm 45^\circ$ (Figure V.16b), la cinétique de décroissance du module sécant est accélérée après fatigue hydrique par rapport à l'état non vieilli. On observe que plus le nombre de cycles de fatigue hydrique augmente, plus le plateau en fin d'essai se réduit. Après 30 cycles de fatigue hydrique, la valeur du module sécant normé approche les 20% en fin d'essai de traction, soit une perte de rigidité du matériau d'environ 80%. Cette chute conduit le verre/Epolam $\pm 45^\circ$ à avoir une rigidité en fin d'essai proche de celle du chanvre/Greenpoxy $\pm 45^\circ$. En effet, après 30 cycles de fatigue hydrique, en fin d'essai mécanique, le module sécant des composites chanvre/Greenpoxy $\pm 45^\circ$ vaut 1,78 GPa, alors que celui des composites verre/Epolam $\pm 45^\circ$ est proche de 1,90 GPa.

Bilan sur l'influence de la fatigue hydrique sur le comportement des composites

Dans ce chapitre, l'ensemble des composites tissés a été soumis au vieillissement par fatigue hydrique défini en fin de chapitre IV. Jusqu'à 30 cycles de fatigue hydrique ont été appliqués. Dans un premier temps, le comportement à l'absorption en eau a été analysé. Les résultats ont montré que, tout au long de la fatigue hydrique, le comportement à l'absorption de l'ensemble des composites étudiés suit le modèle de Fick. Pour tous les composites à renfort de chanvre, les taux d'absorption à saturation et les cinétiques d'absorption augmentent durant les premiers cycles de fatigue hydrique puis ont tendance à se stabiliser après quelques cycles, hormis pour les composites chanvre/Elium, dont le coefficient de diffusion de Fick augmente de manière continue avec le nombre de cycles de fatigue hydrique. Il a également été montré que les composites chanvre/Greenpoxy semblent être moins affectés par la succession des cycles de fatigue hydrique que les autres biocomposites. Le verre/Epolam, quant à lui, voit son taux d'absorption à saturation chuter de 31% entre le 1^{er} et le 30^{ème} cycle de fatigue mais son coefficient de diffusion connaît la plus forte hausse (il est multiplié par 32). Il a également été montré qu'après 10 cycles de fatigue hydrique, la température de transition vitreuse diminue pour l'Epolam et la Greenpoxy (de 10% et 14%, respectivement) mais augmente de 7% pour l'Elium. Enfin, une analyse des variations dimensionnelles des composites a permis de mettre en évidence une corrélation entre les variations d'épaisseur et celles du coefficient de diffusion.

Des essais de traction ont ensuite été réalisés sur l'ensemble des composites à différents stades du vieillissement par fatigue hydrique. Il a été observé pour tous les matériaux une forte baisse par rapport à l'état non vieilli du module d'Young et de la résistance en traction dès les premiers cycles de fatigue hydrique, accompagnée d'une hausse importante de la déformation à rupture. Parmi les biocomposites, les composites chanvre/Greenpoxy sont les moins affectés par la fatigue hydrique, ce qui est en accord avec l'analyse du comportement à l'absorption en eau. Aussi, il est important de noter que la contrainte maximale des composites verre/Epolam est plus affectée que celle des composites à renfort de chanvre après 30 cycles de fatigue hydrique (plus de 50% de baisse contre moins de 40%). De plus, la résistance en traction des composites verre/Epolam se dégrade de manière continue lors de la fatigue hydrique alors qu'elle se stabilise dès le 5^{ème} cycle pour les composites à renfort de chanvre.

Afin de déterminer si les variations des propriétés mécaniques observées après fatigue hydrique sont dues aux phases d'immersion-séchage successives ou simplement aux variations de température pendant celles-ci, une série de 9 cycles de fatigue thermique a été appliquée à plusieurs composites de l'étude. Même si la fatigue thermique entraîne quelques variations des grandeurs mécaniques liées au séchage de longue durée, les résultats

confirment bien que les variations observées après fatigue hydrique sont liées à la présence des phases d'immersion.

Pour finir, des essais de traction à chargements répétés progressifs ont permis de suivre l'évolution des modules sécants de tous les composites de l'étude après différents nombres de cycles de fatigue hydrique. Pour tous les matériaux étudiés et quelle que soit l'orientation (hormis le verre/Epilam $0^\circ/90^\circ$), on observe une accélération de la chute du module sécant au cours de la traction par rapport aux matériaux non vieillis : le module sécant commence à diminuer plus tôt et sa baisse est plus rapide. Cette accélération est particulièrement marquée pour le chanvre/Elium. Une rigidification en fin d'essai est également observée pour certains matériaux. Ce phénomène sera analysé dans le chapitre suivant. Enfin, il est intéressant de noter qu'après 30 cycles de fatigue hydrique, les composites chanvre/Greenpoxy $\pm 45^\circ$ ont un module sécant en fin d'essai mécanique très proche de celui des composites verre/Epilam $\pm 45^\circ$, et viennent ainsi concurrencer ce composite traditionnel.

VI. Analyse multi-échelle des endommagements après fatigue hydrique

Ce chapitre a pour but d'étudier, aux différentes échelles, les mécanismes d'endommagement qui se développent au cours de la fatigue hydrique dans les matériaux composites étudiés. Dans un premier temps, une analyse sera réalisée pour chaque constituant : fil de chanvre, matrices et interface fil/matrice. Ensuite, l'endommagement dans les composites tissés sera étudié par émission acoustique, observations microscopiques et microtomographies à rayons X. L'objectif sera notamment de déterminer les liens qui existent entre les mécanismes d'endommagement des constituants et ceux à l'échelle du composite tissé. La dernière partie de ce chapitre s'attachera à expliquer les phénomènes de rigidification observés en fin d'essai de traction dans les composites tissés ($0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$).

VI.1 Influence des vieillissements hydriques sur l'endommagement des constituants des composites

Dans cette partie, l'influence de la fatigue hydrique sur le comportement des constituants est analysée. Le cas échéant, le comportement mécanique des constituants soumis à de la saturation en eau (chauffée ou non) sera également discuté.

VI.1.1 Fil de chanvre

Des essais de traction monotone ont été effectués sur des fils de chanvre ayant subi 10 cycles de fatigue hydrique, dans les mêmes conditions que les composites tissés. La Figure VI.1 présente des courbes contrainte-déformation apparente caractéristiques de l'ensemble des essais de traction réalisés sur fils après 10 cycles de fatigue hydrique. Les courbes ont une allure similaire à celles obtenues pour les fils de chanvre stockés à l'ambiante, présentées en partie III.1.2 (Figure III.3).

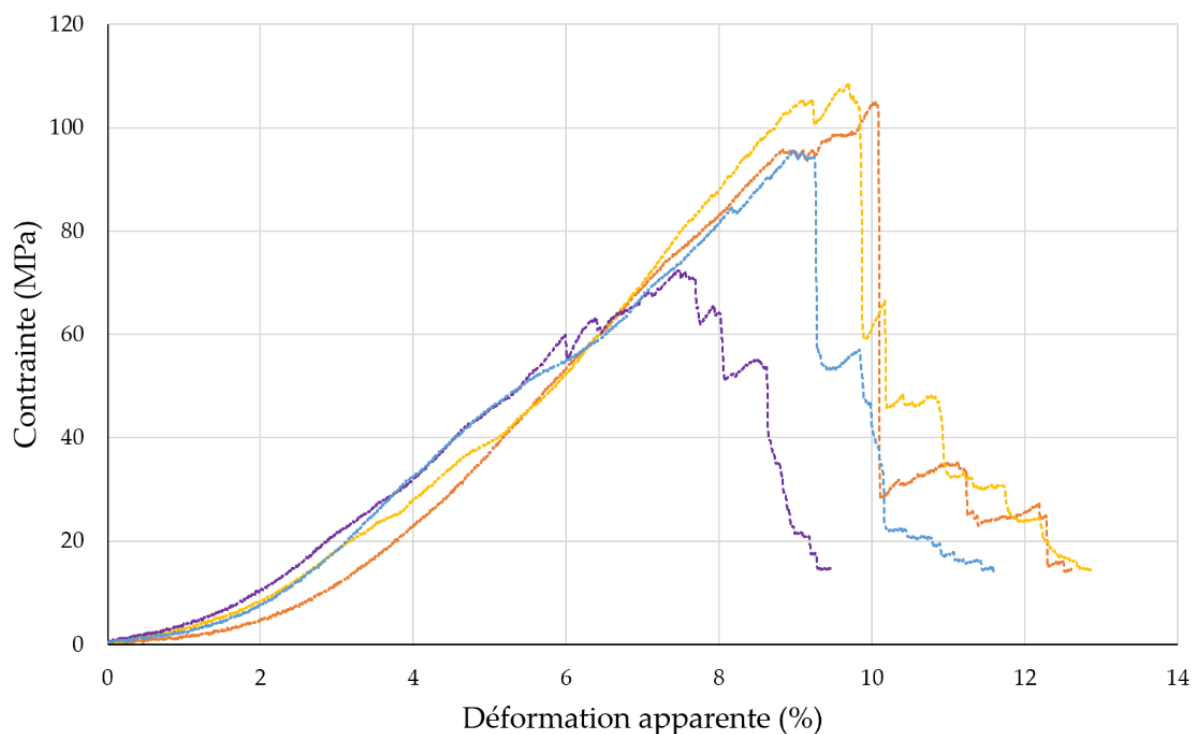


Figure VI.1 : Courbes contrainte-déformation apparente caractéristiques des essais de traction monotone sur fils de chanvre après 10 cycles de fatigue hydrique.

Pour mieux comprendre l'allure des courbes de traction obtenues sur les fils de chanvre, quelques essais ont été suivis à l'aide d'une caméra rapide. La Figure IV.2 montre un fil de chanvre en cours de sollicitation mécanique, pour différents niveaux d'effort appliqué. Dans un premier temps, l'effort appliqué sur le fil de chanvre permet une mise en tension de celui-ci dans la direction de traction (Figures VI.2a et VI.2b). Cela entraîne l'apparition des pieds de courbe observés en Figure VI.1. Ensuite, lorsque le fil est tendu, le comportement devient quasi-linéaire. Puis les chutes successives de contrainte observées sur les courbes de la Figure VI.1 s'expliquent par la rupture progressive de faisceaux de fibres (Figures VI.2c et VI.2d). Une version animée de la Figure VI.2 est disponible via le lien [\[h6\]](#) ou en scannant le QR code en bas à droite de la figure.

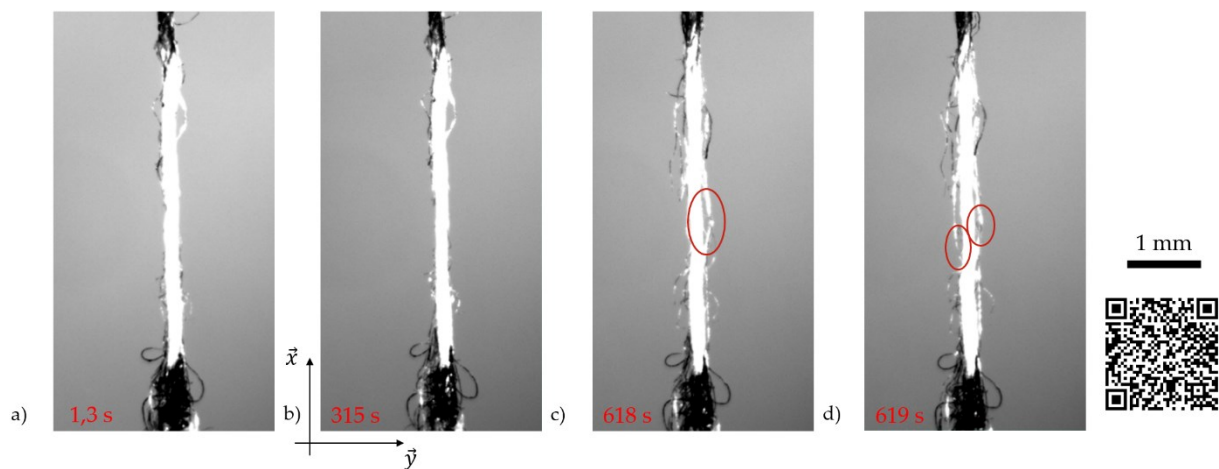


Figure VI.2 : Exemple de traction monotone sur un fil de chanvre après 10 cycles de fatigue hydrique : a) et b) mise en tension du fil, c) et d) rupture progressive de faisceaux de fibres.

À partir de ces essais, les valeurs de contrainte maximale σ_m , de module apparent E_0^{app} et de déformation à rupture ϵ_r^{app} après fatigue hydrique ont pu être déterminées. À des fins de comparaison, des essais de traction ont également été réalisés sur des fils saturés en eau à 20°C. Ces essais ont été effectués directement en sortie d'immersion afin d'éviter un séchage trop important. En effet, Célineo *et al.* [114] ont montré qu'au bout d'une heure, les fibres végétales peuvent perdre jusqu'à plus de 50% de leur teneur en eau. Les valeurs des grandeurs mécaniques obtenues sur fils de chanvre non vieillis (noté « Ambient »), saturés en eau à 20°C (noté « Saturé 20°C ») et après 10 cycles de fatigue hydrique (noté « 10 cycles ») sont regroupées dans le Tableau VI.1 et la Figure VI.2. Les variations par rapport à l'état non vieilli, notées Δ_{Amb}^x , ont été ajoutées dans le Tableau VI.1.

Le premier constat est que l'on retrouve une dispersion importante, inhérente à ce type de matériau, même si elle semble un peu atténuée après 10 cycles de fatigue hydrique. Cependant, des tendances se dégagent des résultats. En effet, une perte d'environ 40% est relevée sur la contrainte maximale après 10 cycles de fatigue hydrique par comparaison avec l'état non vieilli. Quant à l'évolution du module apparent, une diminution de 37% est observée après fatigue hydrique. Enfin, la déformation apparente à rupture des fils de chanvre est

divisée environ par deux après saturation en eau et après fatigue hydrique par rapport à l'état non vieilli.

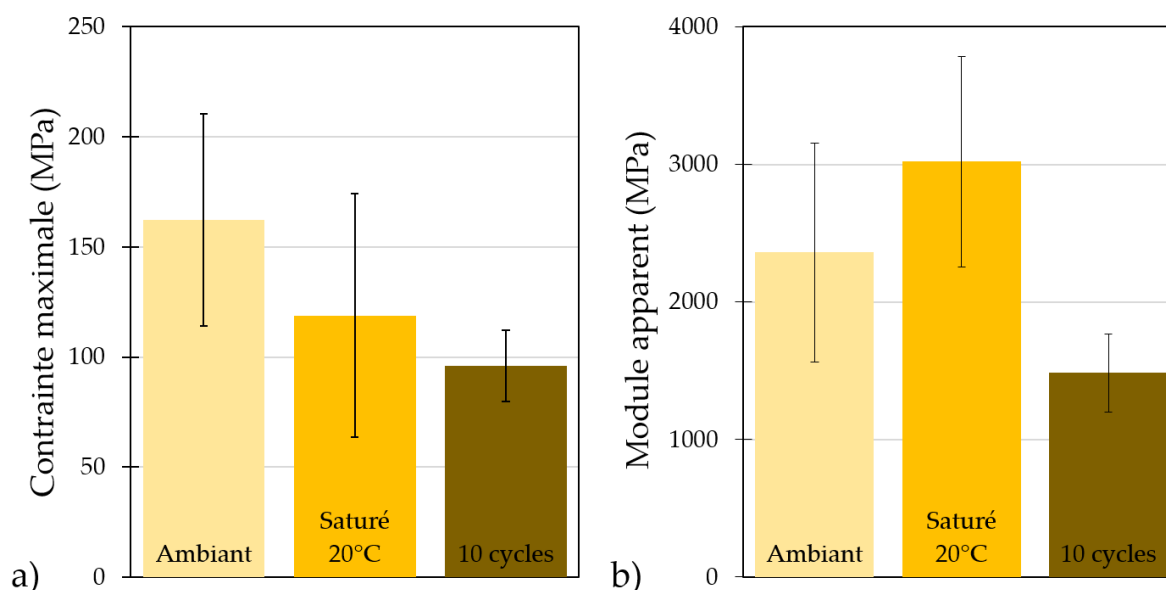


Figure VI.3 : Propriétés mécaniques des fils de chanvre non vieillis, saturé en eau à 20°C et après 10 cycles de fatigue hydrique : a) contrainte maximale et b) module apparent.

Tableau VI.1 : Propriétés mécaniques en traction des fils de chanvre non vieillis, saturés en eau à 20°C et après 10 cycles de fatigue hydrique, et variations par rapport au stockage ambiant.

	σ_m (MPa)	E_0^{app} (GPa)	ϵ_r^{app} (%)
Ambiant	162 ± 48	2,36 ± 0,79	16 ± 5
Saturé 20°C	119 ± 56	3,02 ± 0,77	7,8 ± 4,0
$\Delta_{Amb}^{20°C}$	-27%	+28%	-51%
10 cycles	96 ± 16	1,49 ± 0,28	9,1 ± 1,5
Δ_{Amb}^{10}	-41%	-37%	-43%

Ces dégradations des propriétés mécaniques des fils de chanvre pourront expliquer en partie celles observées dans les composites. Cependant, il faut aussi prendre en compte le fait qu'au sein du composite, les fils de chanvre ne sont pas en contact direct avec l'eau, contrairement aux échantillons qui ont été étudiés ici (saturés en eau ou après 10 cycles de fatigue). En effet, dans un composite, les fils sont imprégnés de résine, matériau beaucoup moins hydrophile, ce qui va probablement limiter leur dégradation. Les variations de propriétés mesurées ici ne sont donc pas transposables telles quelles dans les composites.

VI.1.2 Matrices

Le comportement en traction des matrices de l'étude a été analysé pour différents conditionnements: saturation en eau à 60°C et vieillissement par 1 ou 10 cycles de fatigue hydrique.

VI.1.2.1 Influence de la saturation en eau

Les courbes contrainte-déformation obtenues pour les matrices saturées en eau à 60°C sont présentées dans la Figure VI.4 et comparées avec les non vieilles (issues de la Figure III.4). Comme attendu, la saturation en eau a un effet plastifiant sur toutes les matrices polymères. Cette plastification se traduit par une augmentation de la déformation à rupture accompagnée d'un affaiblissement de la contrainte maximale et du module d'Young.

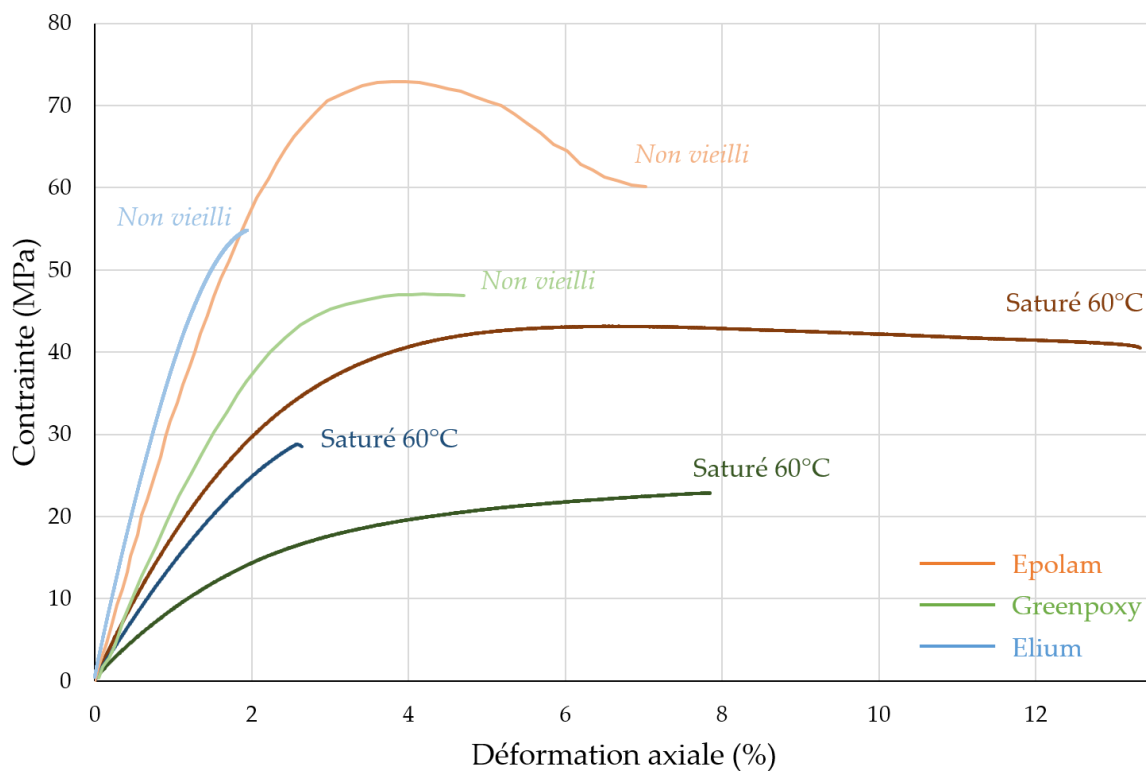


Figure VI.4 : Courbes contrainte-déformation des trois résines non vieilles et saturées en eau à 60°C.

Le Tableau IV.2 permet de comparer quantitativement les pertes des propriétés mécaniques en traction après saturation en eau à 60°C. Les contraintes à rupture σ_m^x , les modules d'Young E_0^x et les déformations à rupture ϵ_r^x sont précisées, ainsi que leurs variations $\Delta_{Amb}^{60^\circ C}$ par rapport

à l'état ambiant. De plus, à des fins de comparaison, les valeurs obtenues pour les composites tissés 0°/90° ont été ajoutées dans le Tableau (valeurs issues de la partie IV.2.2).

Tableau VI.2 : Propriétés mécaniques en traction des résines Epolam, Greenpoxy et Elium saturées en eau à 60°C et variations par rapport à l'état non vieilli. Comparaison avec les composites tissés orientés à 0°/90°.

	σ_m		E_0		ϵ_T	
	Saturé 60°C (MPa)	$\Delta_{60^\circ C}^{60^\circ C}$	Saturé 60°C (GPa)	$\Delta_{60^\circ C}^{60^\circ C}$	Saturé 60°C (%)	$\Delta_{60^\circ C}^{60^\circ C}$
Epolam	43,2 ± 1,9	-40%	1,95 ± 0,20	-40%	13,8 ± 1,4	+97%
Chanvre/Epolam 0°/90°	84,4 ± 4,2	-9,0%	3,39 ± 3,4	-62%	8,61 ± 0,91	+190%
Greenpoxy	22,9 ± 1,4	-53%	0,93 ± 0,47	-63%	8,40 ± 0,78	+95%
Chanvre/Greenpoxy 0°/90°	81,9 ± 5,2	-17%	2,86 ± 0,29	-69%	9,62 ± 1,02	+206%
Elium	28,8 ± 1,6	-50%	1,52 ± 0,15	-66%	2,95 ± 0,31	+48%
Chanvre/Elium 0°/90°	56,7 ± 2,8	-5,5%	2,42 ± 0,24	-51%	7,60 ± 0,76	+165%

A priori, on aurait pu croire qu'un calcul basé sur la loi des mélanges et la théorie des stratifiés permettrait de relier les variations de propriétés en traction des constituants (fils et résine) avec celles des composites tissés. Cependant, les valeurs reportées dans le Tableau VI.2 montrent qu'il n'y a pas de lien direct entre ces valeurs. Par exemple, si l'on considère le module d'Young, l'Epolam perd 40% après saturation en eau et l'Elium perd 66%. Dans les mêmes conditions, les composites constitués du même tissu de chanvre et dans la même proportion, perdent respectivement 62% de module d'Young pour le chanvre/Epolam et 51% pour le chanvre/Elium. Ces résultats démontrent qu'on ne peut pas expliquer le comportement des composites tissés seulement par celui de leur renfort et de leur matrice, d'autres mécanismes entrent en jeu.

VI.1.2.2 Influence de la fatigue hydrique

La Figure VI.5 présente les courbes contrainte-déformation issues des essais de traction effectués sur les trois résines après 1 et 10 cycles de fatigue hydrique, identiques à ceux appliqués aux composites tissés. Ces courbes sont comparées avec celles obtenues après un stockage à température et humidité ambiantes (issues de la Figure III.4).

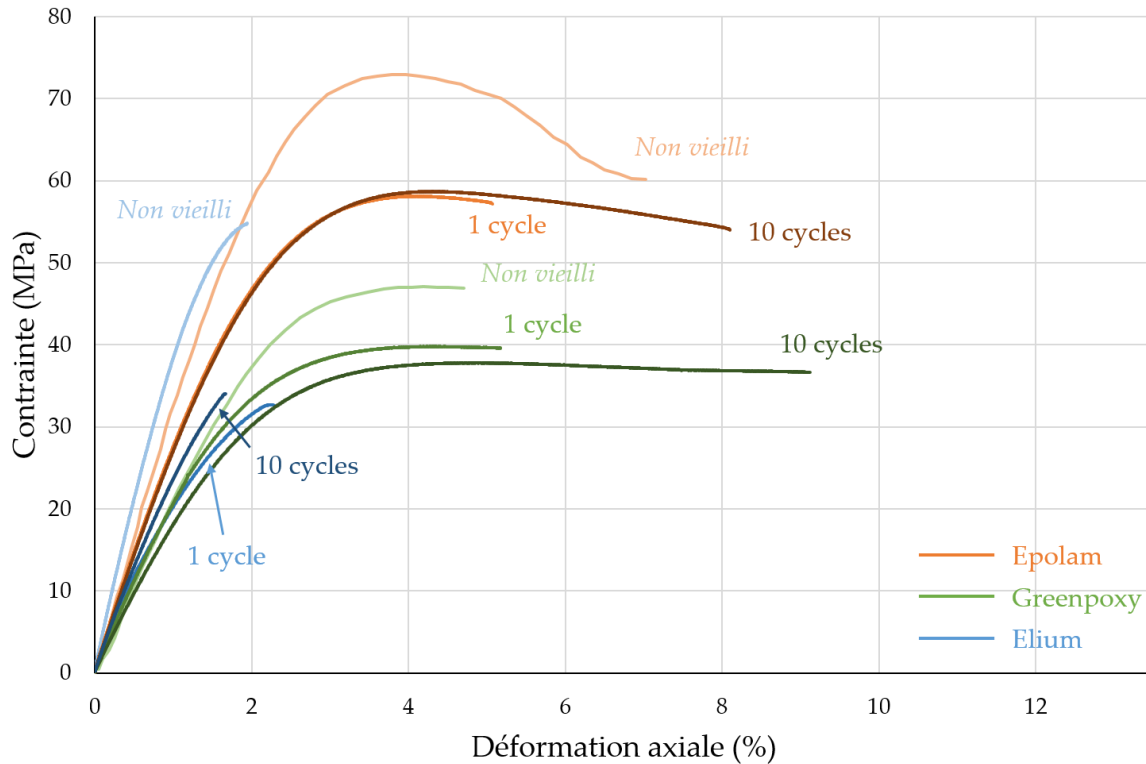


Figure VI.5 : Courbes contrainte-déformation des trois résines non vieilles et après 1 et 10 cycles de fatigue hydrique.

Les valeurs de contrainte maximale σ_m^i et de module d'Young E_0^i des trois matrices avec i le nombre de cycles de fatigue hydrique, et leurs variations par rapport à l'état non vieilli Δ_{Amb}^i sont données dans le Tableau VI.3.

Tableau VI.3 : Contrainte maximale σ_m^i et module d'Young E_0^i des résines Epolam, Greenpoxy et Elium pour 1 et 10 cycles de fatigue hydrique et variations par rapport à l'état non vieilli Δ_{Amb}^i .

	σ_m^i				E_0^i			
	1 cycle (MPa)	Δ_{Amb}^1	10 cycles (MPa)	Δ_{Amb}^{10}	1 cycle (GPa)	Δ_{Amb}^1	10 cycles (GPa)	Δ_{Amb}^{10}
Epolam	58,1 ± 0,1	-18,7%	58,8 ± 0,1	-17,8%	2,86 ± 0,02	-18,2%	2,84 ± 0,02	-18,8%
Greenpoxy	39,9 ± 0,2	-18,5%	37,7 ± 0,1	-23,1%	2,16 ± 0,06	-14,1%	1,93 ± 0,01	-23,1%
Elium	34,4 ± 4,6	-39,8%	39,9 ± 6,1	-30,1%	2,39 ± 0,17	-46,0%	2,74 ± 0,15	-37,9%

Pour les trois résines, on constate que les pertes de contrainte maximale et de module d'Young sont très importantes dès le premier cycle de fatigue hydrique. Elles sont mêmes supérieures à celles atteintes après 10 cycles de fatigue hydrique pour l'Elium. Ce résultat semble bien confirmer que les cycles appliqués ont également joué un rôle de traitement thermique sur cette résine, comme observé avec l'augmentation de sa température transition vitreuse (partie V.2.1). Pour la résine Epolam, les pertes n'évoluent pas entre le 1^{er} et le 10^{ème} cycle de fatigue

hydrique, et elles augmentent sensiblement pour la Greenpoxy. Les évolutions des déformations à rupture ϵ_r^i sont présentées dans le Tableau VI.4. Les variations observées sont difficiles à interpréter, les déformations à rupture des résines seules étant tributaires de la présence du moindre défaut (porosité, rayure, etc.). Cependant, on retrouve le fait que l'Elium est la résine la moins impactée par les 10 cycles de fatigue hydrique (+1,2% de déformation à rupture), alors que la Greenpoxy est la plus touchée (+93% de déformation à rupture).

Tableau VI.4 : Déformation à rupture ϵ_r^i des résines Epolam, Greenpoxy et Elium pour 1 et 10 cycles de fatigue hydrique et variations par rapport à l'état non vieilli Δ_{Amb}^i .

	ϵ_r^i			
	1 cycle (%)	Δ_{Amb}^1	10 cycles (%)	Δ_{Amb}^{10}
Epolam	4,93 ± 0,20	-29,6%	7,80 ± 0,40	+11,4%
Greenpoxy	4,62 ± 0,78	+7,5%	8,30 ± 1,20	+93,0%
Elium	1,92 ± 0,41	-25,3%	1,99 ± 0,32	+1,19%

Dans tous les cas, on constate à nouveau que les seules variations de propriétés de la matrice et du renfort après fatigue hydrique ne peuvent suffire à expliquer les variations observées dans les composites tissés. On s'intéressera donc dans la partie suivante à l'évolution de l'interface chanvre/résine après fatigue hydrique.

VI.1.2.3 Observations macroscopiques

Pour analyser les changements d'aspect des résines polymères après les différents vieillissements hydriques, la Figure VI.6 présente des photographies des éprouvettes de résine pure (Epolam, Greenpoxy et Elium) non vieilles, saturées en eau à 60°C et après 1 et 10 cycles de fatigue hydrique.

La saturation en eau à 60°C n'a que peu d'effet sur l'aspect visuel des résines thermodures. En revanche, les éprouvettes d'Elium deviennent opaques après la saturation en eau à 60°C. Cette opacité, synonyme d'un changement d'indice de réfraction de la lumière au sein de la matrice, est probablement due à une modification intrinsèque du polymère lors de ce vieillissement.

Pendant la fatigue hydrique, un « jaunissement » des trois polymères s'opère, et il s'accroît lorsque le nombre de cycles de fatigue hydrique augmente (Figure VI.6). La fatigue hydrique peut notamment produire deux phénomènes de vieillissement chimique : l'hydrolyse, par les molécules d'H₂O durant les phases d'absorption en eau, et l'oxydation, par l'oxygène présent dans l'air pendant les phases de séchage. Il a déjà été montré que l'oxydation thermiquement activée - appelée thermo-oxydation - peut provoquer le jaunissement des polymères en

général, et plus particulièrement des époxy [115]–[117]. En effet, 10 cycles de fatigue hydrique représentent un vieillissement cumulé par thermo-oxydation de 20 jours à 40°C. Aussi, Ernault *et al.* [118] ont montré que la thermo-oxydation peut avoir comme effet d'abaisser la température de transition vitreuse dans certaines résines époxy, ce qui pourrait donc contribuer aux baisses de T_g observées pour les résines thermodures après 10 cycles de fatigue hydrique (Tableau V.3).

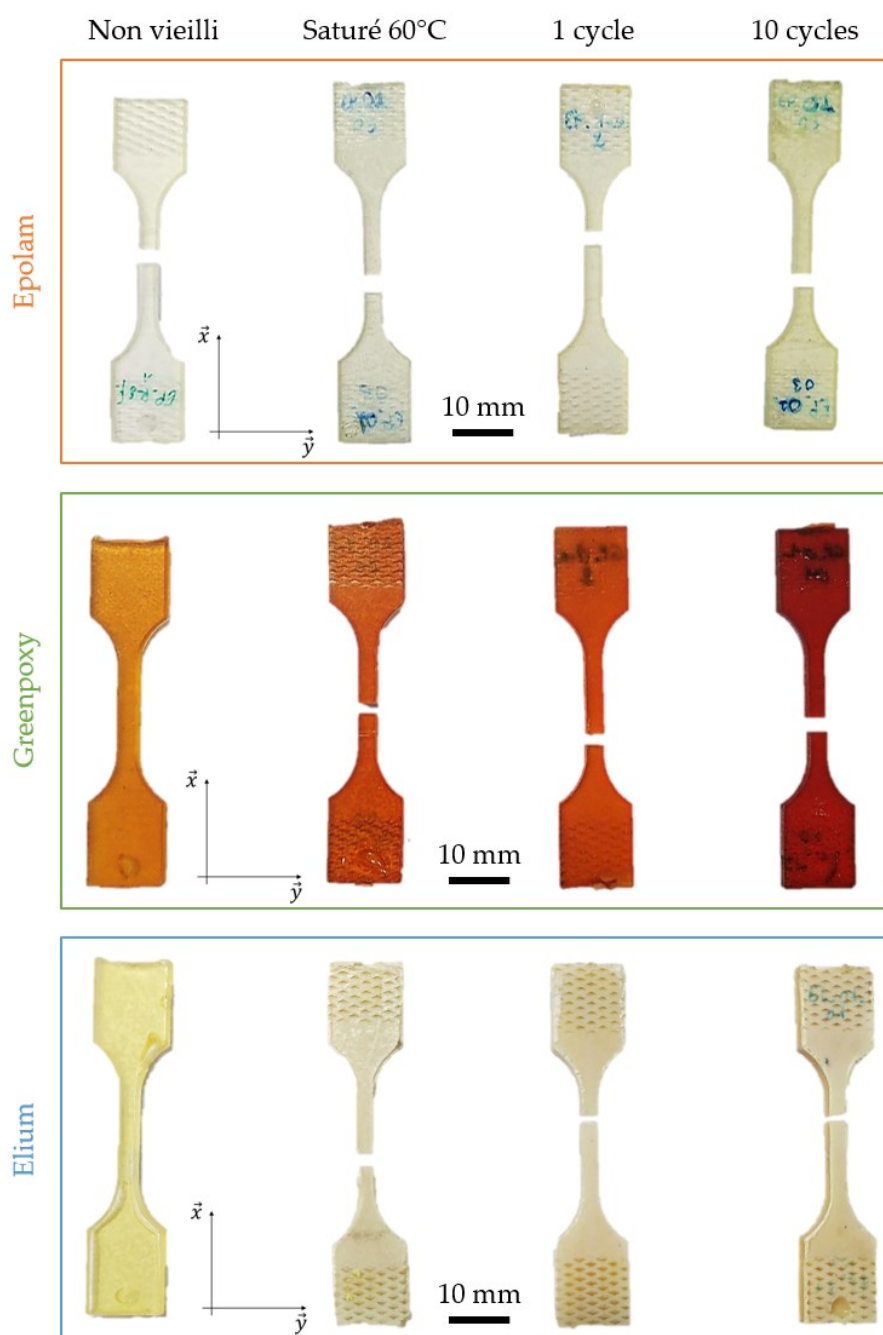


Figure VI.6 : Photographies des éprouvettes de résine pure non vieilles, saturées en eau à 60°C et après 1 et 10 cycles de fatigue hydrique.

VI.1.3 Interface

Cette partie se focalise sur l'effet de la fatigue hydrique sur l'interface fil/matrice des composites chanvre/Epolam. Pour cela, des éprouvettes monofilamentaires MChEP ont été intégrées au vieillissement par fatigue hydrique. Des lots d'éprouvettes ont été extraits du vieillissement après 1 et 10 cycles de fatigue hydrique dans le but de réaliser des essais de fragmentation.

Après 1 ou 10 cycles de fatigue hydrique, il a été constaté que les essais mécaniques n'aboutissaient pas à l'apparition de fragments au sein du fil de chanvre. Cela reviendrait à dire que la longueur de fragments est « infinie » et donc que la valeur de l'IFSS, caractérisant la cohésion entre le fil et la matrice, est égale à « zéro ».

Pour mieux comprendre ce qui se passe à l'interface fil/matrice lors de la fatigue hydrique, des acquisitions microtomographiques des zones utiles des éprouvettes monofilamentaires ont été effectuées avant et après essai mécanique pour les conditionnements « non vieilli » et « après 1 cycle de fatigue hydrique ». Pour ces scans, la résolution était de $1,5 \mu\text{m}/\text{voxel}$. La Figure VI.7 présente une slice centrale et une vue de la section (notée A-A) d'une éprouvette monofilamentaire MChEP non vieilli avant essai de fragmentation. Cet état correspond à l'état post-fabrication. Sur la Figure VI.7, on observe quelques microporosités, dues aux bulles d'air emprisonnées lors de la fabrication, mais aucun endommagement. La vue A-A permet également de confirmer la bonne imprégnation de la résine Epolam au sein du fil de chanvre, entre les fibres élémentaires.

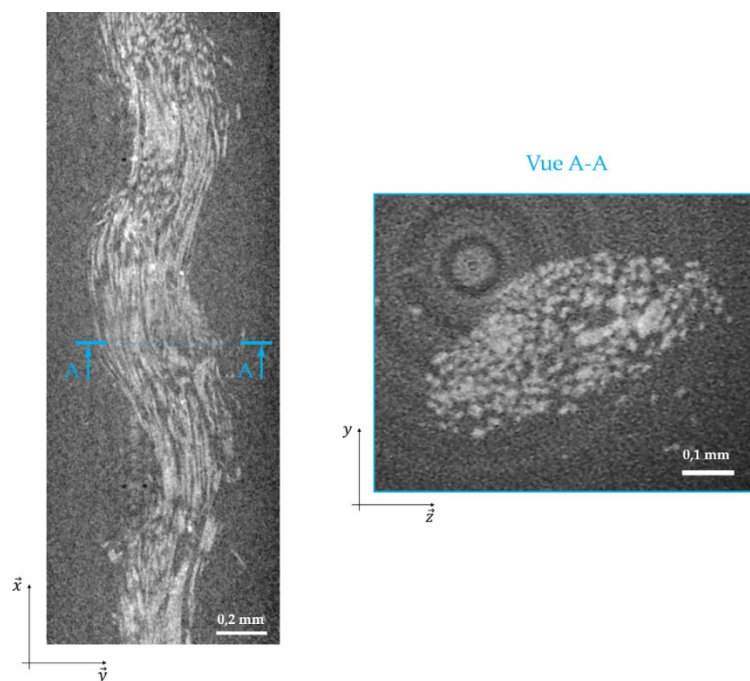


Figure VI.7 : Microtomographies d'une éprouvette monofilamentaire MChEP non vieilli avant essai de fragmentation.

La Figure VI.8 présente, de la même façon que précédemment, une slice centrale et plusieurs vues (notées A-A et B-B) d'une éprouvette monofilamentaire MChEP non vieillie après essai de fragmentation. Cette éprouvette MChEP est une de celles testées dans le cadre de l'évaluation de la qualité d'adhésion à l'interface fil/matrice de la partie III.4. Dans la zone scannée, un fragment est observable. Le zoom de la Figure VI.8 permet de se rendre compte qu'un fragment de fil correspond en réalité à un ensemble de ruptures de faisceaux de fibres, en « escalier ». Une première section est observée au niveau du fragment (vue A-A). On constate la présence de décohésions renfort/matrice qui s'opèrent à deux échelles : en périphérie de fil, on parle alors de décohésions fil/matrice, et à l'intérieur du fil, qu'on peut désigner comme des décohésions fibre/matrice. Une deuxième section (vue B-B), positionnée en dehors du fragment, a également été observée. Aucun endommagement de type décohésion n'est visible. Cela montre que l'endommagement reste localisé autour de la zone de fragmentation, comme cela a déjà été observé en partie III.4.2 (Figure III.30) sur l'éprouvette monofilamentaire à matrice chargée en Al_2O_3 .

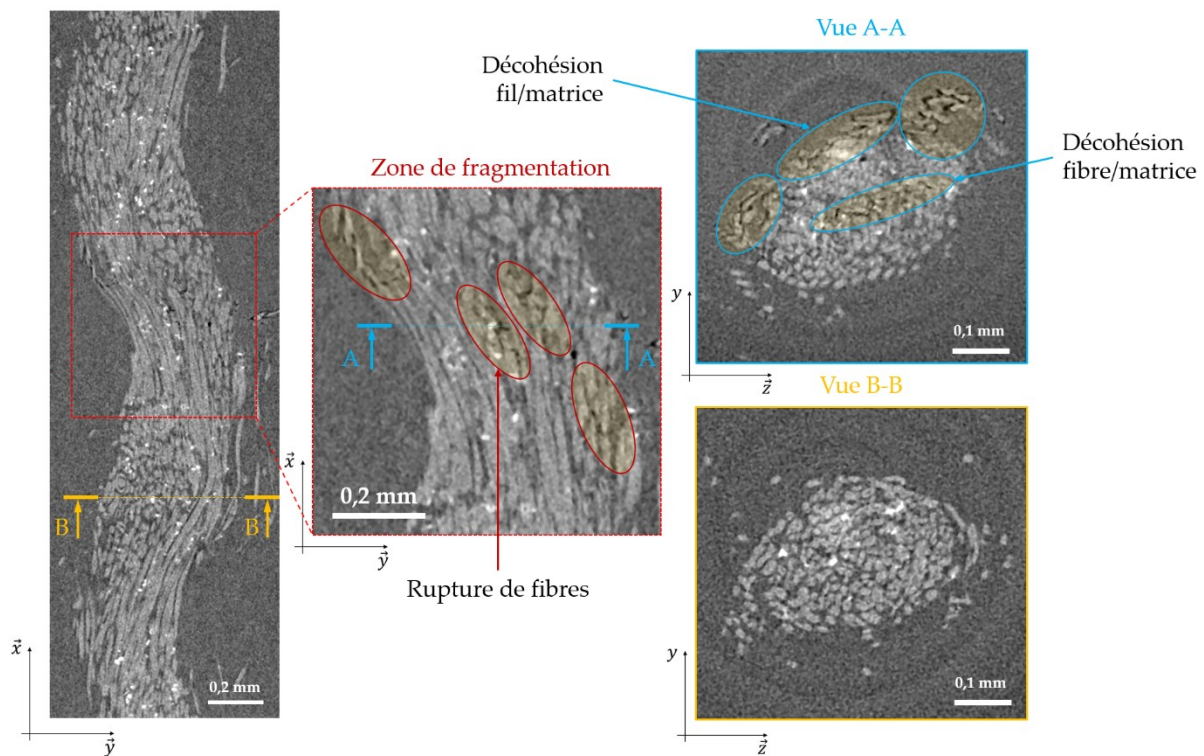


Figure VI.8 : Microtomographies d'une éprouvette MChEP non vieillie après essai de fragmentation, zoom sur un fragment et vues de deux sections : A-A et B-B.

Le même type d'observations a été effectué sur une éprouvette monofilamentaire MChEP ayant subi 1 cycle de fatigue hydrique : avant l'essai de traction (Figure VI.9) et après l'essai de traction (Figure VI.10). Sur la Figure VI.9, on constate, par rapport aux microtomographies de la Figure VI.7, un fort développement de l'endommagement interfacial sur une grande partie du fil avant même la sollicitation mécanique. La vue A-A montre les décohésions

fil/matrice et fibre/matrice. Ce résultat prouve la création de décohésions dès le premier cycle de fatigue hydrique et laisse prédire une mauvaise transmission des efforts au niveau de l'interface fil/matrice lors de l'essai de fragmentation.

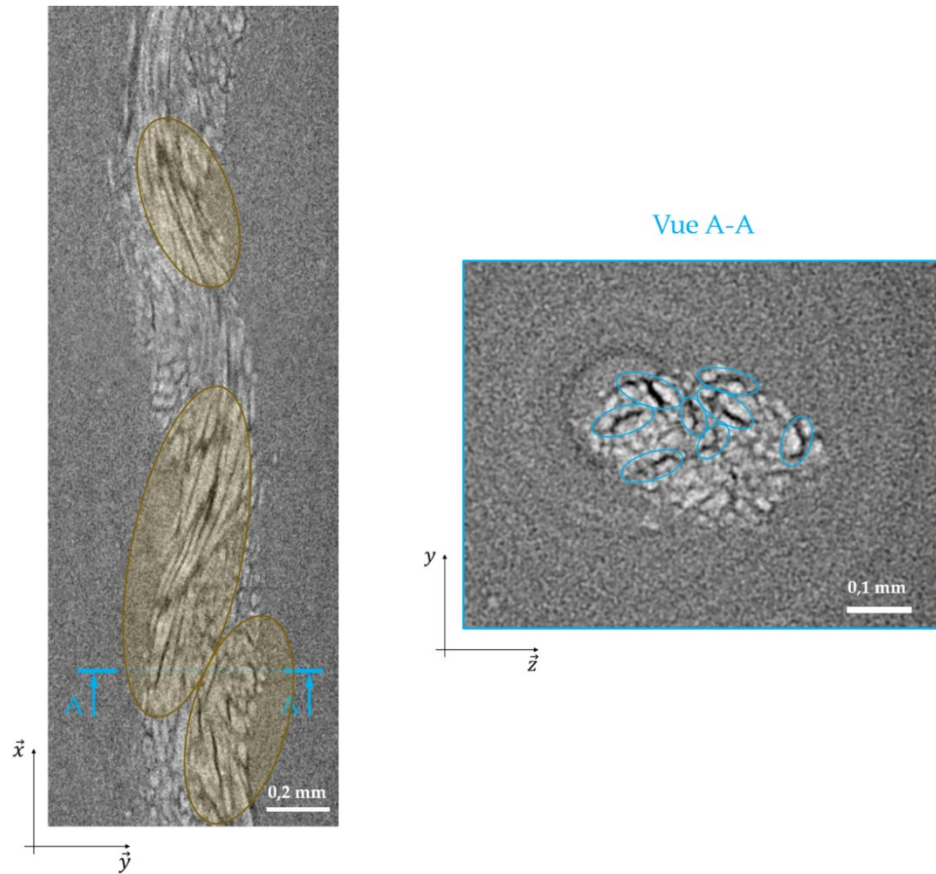


Figure VI.9 : Microtomographies d'une éprouvette MChEP après 1 cycle de fatigue hydrique avant essai de fragmentation et zones de décohésion fil/matrice (surlignées en jaune).

Les microtomographies réalisées après 1 cycle de fatigue hydrique et sollicitation mécanique sont présentées sur la Figure VI.10. On observe que l'endommagement créé par le cycle de fatigue hydrique s'est développé très fortement lors de la sollicitation mécanique et couvre toute la longueur utile. En effet, les vues A-A et B-B montrent, d'une part, un grand nombre de décohésions fil/matrice et fibre/matrice et, d'autre part, une répartition homogène de l'endommagement dans la zone utile. Finalement, ces observations montrent que la fatigue hydrique dégrade tellement l'interface, dès le premier cycle, que lorsque l'échantillon est testé en traction il n'y aura pas fragmentation du fil mais plutôt développement des pré-endommagements créés par la fatigue hydrique.

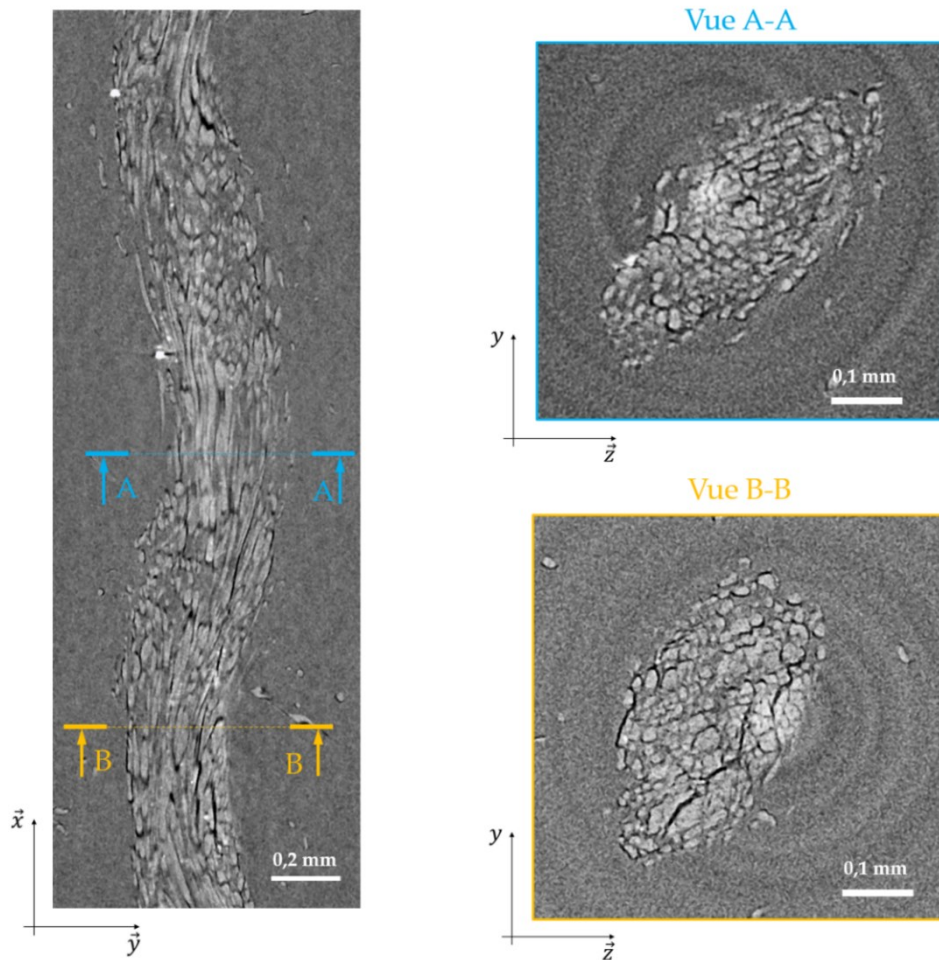


Figure VI.10 : Microtomographies d'une éprouvette MChEP après 1 cycle de fatigue hydrique et après essai de traction.

Afin de quantifier les endommagements correspondant aux Figures VI.7 à VI.10, les volumes scannés par microtomographie ont été segmentés, en distinguant le fil de chanvre et les décohésions renfort/matrice. La Figure VI.11 présente ainsi le résultat des segmentations sur un tronçon de la zone utile des éprouvettes avant (Figure VI.11a) et après (Figure VI.11b) sollicitation mécanique pour l'état non vieilli. De la même manière, la Figure VI.12 présente les segmentations effectuées sur des tronçons d'éprouvettes monofilamentaires après 1 cycle de fatigue hydrique avant (Figure VI.12a) et après (Figure VI.12b) essai mécanique. Le QR Code en bas à droite de la Figure VI.12 et le lien [\[h7\]](#) proposent une visualisation 3D en rotation des fils de chanvre et des endommagements segmentés pour les quatre configurations présentées. Les segmentations ont été effectuées tel que décrit dans la partie II.4.3.2 à partir du plugin *Trainable Weka Segmentation 3D* du logiciel *ImageJ*. Les zones segmentées représentent un parallélépipède rectangle aux dimensions suivantes : $500 \times 500 \times 2800$ pixels³, soit, $0,75 \times 0,75 \times 4,2$ mm³. Le nombre total de voxels par segmentation est donc d'environ 700 millions.

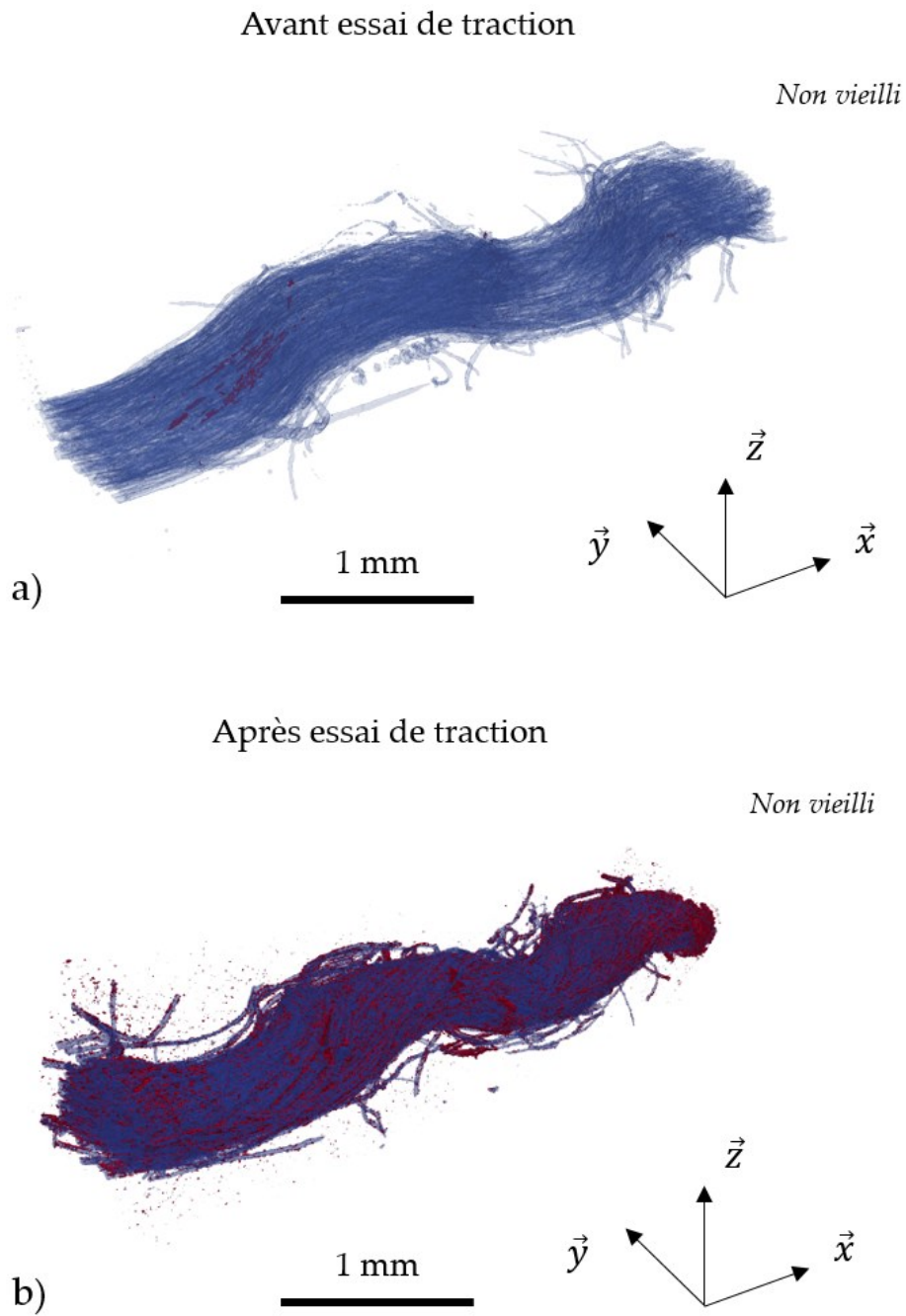


Figure VI.11 : Segmentation du fil de chanvre (bleu) et des endommagements (rouge) dans des éprouvettes monofilamentaires MChEP non vieilles a) avant et b) après essai de fragmentation.

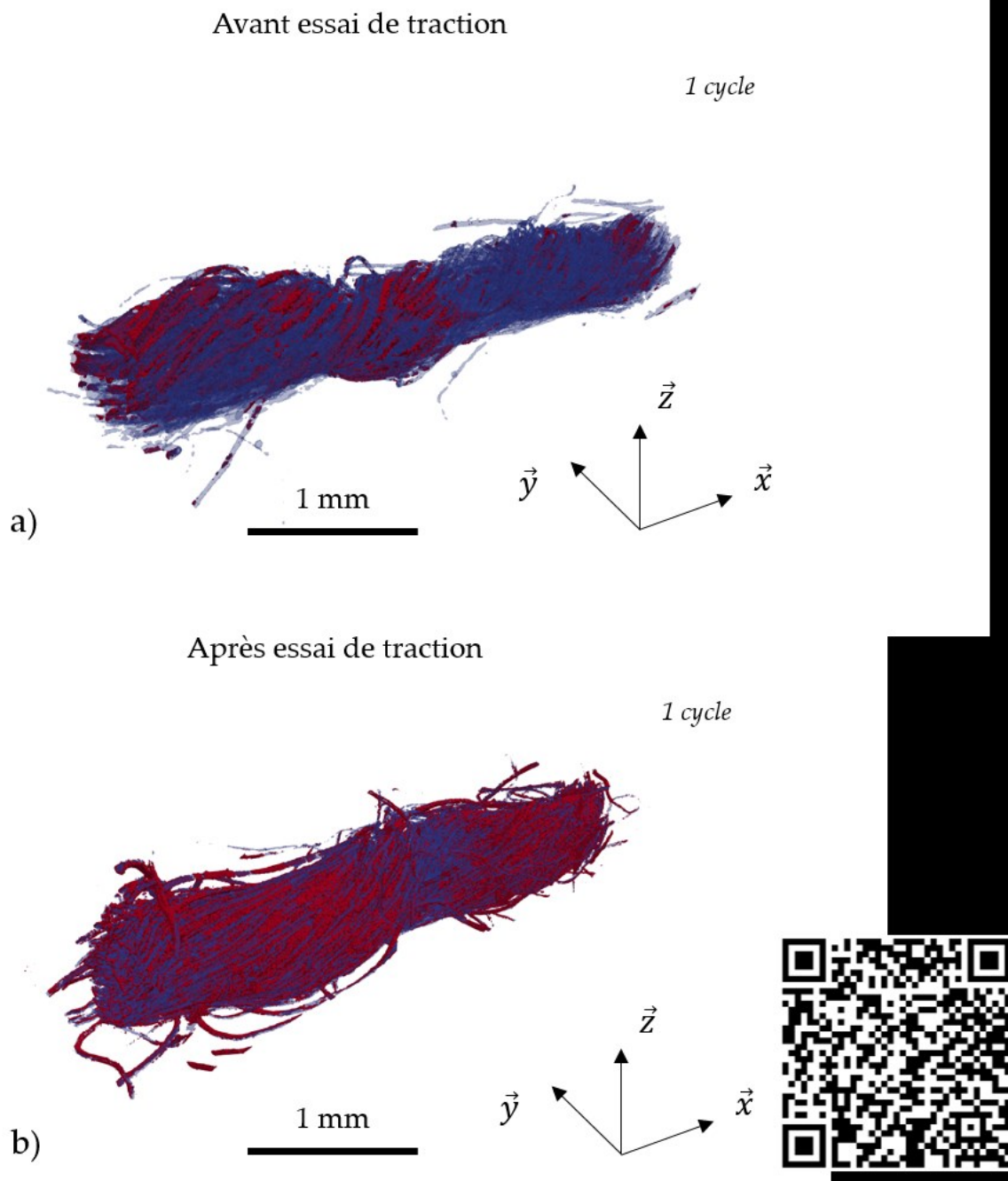


Figure VI.12 : Segmentation du fil de chanvre (bleu) et des endommagements (rouge) dans des éprouvettes monofilamentaires MChEP après 1 cycle de fatigue hydrique a) avant et b) après essai de traction.

On retrouve sur ces Figures les constatations faites plus haut. On pourra juste noter sur la Figure VI.11a une petite zone avec un manque d'imprégnation, visible au sein du fil par transparence.

À l'aide du code Matlab développé, un indicateur d'endommagement d_{MChEP} a pu être déterminé pour chaque éprouvette monofilamentaire, comme étant le rapport du nombre de voxels associés à l'endommagement (en rouge sur les Figures VI.11 et VI.12) sur le nombre de voxels correspondant au fil de chanvre (en bleu sur les Figures VI.11 et VI.12). Les valeurs sont rassemblées dans le Tableau VI.5. Les résultats montrent qu'à l'état non vieilli la valeur de

d_{MChEP} est très proche de zéro. Après essai de fragmentation, pour la zone scannée, qui comprend un fragment de fil, l'indicateur d'endommagement est égal à 0,109. Il est du même ordre de grandeur que celui mesuré dans une éprouvette monofilamentaire MChEP ayant subi un cycle de fatigue hydrique ($d_{MChEP} = 0,115$). Cela indique qu'après 1 cycle de fatigue hydrique, une éprouvette MChEP contiendra autant d'endommagements qu'une éprouvette non vieillie après rupture en traction. Enfin, lors de la sollicitation mécanique, l'éprouvette ayant subi un cycle de fatigue hydrique verra son indicateur d'endommagement multiplié par 4,5. Cela montre l'ampleur du développement, lors de la traction, des pré-endommagements dus à la fatigue hydrique.

Tableau VI.5 : Valeurs de l'indicateur d'endommagement d_{MChEP} pour une éprouvette monofilamentaire MChEP avant et après fatigue hydrique, et avant et après essai mécanique.

	Non vieilli	Non vieilli + Traction	1 cycle	1 cycle + Traction	10 cycles + Traction
d_{MChEP}	0,001	0,109	0,115	0,509	0,718

L'indicateur d'endommagement a également été déterminé dans une éprouvette monofilamentaire MChEP après 10 cycles de fatigue hydrique et rupture en traction. La valeur de d_{MChEP} obtenue a été ajoutée dans le Tableau VI.5, et la Figure VI.13 illustre l'évolution de l'endommagement en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique pour les éprouvettes monofilamentaires après rupture en traction.

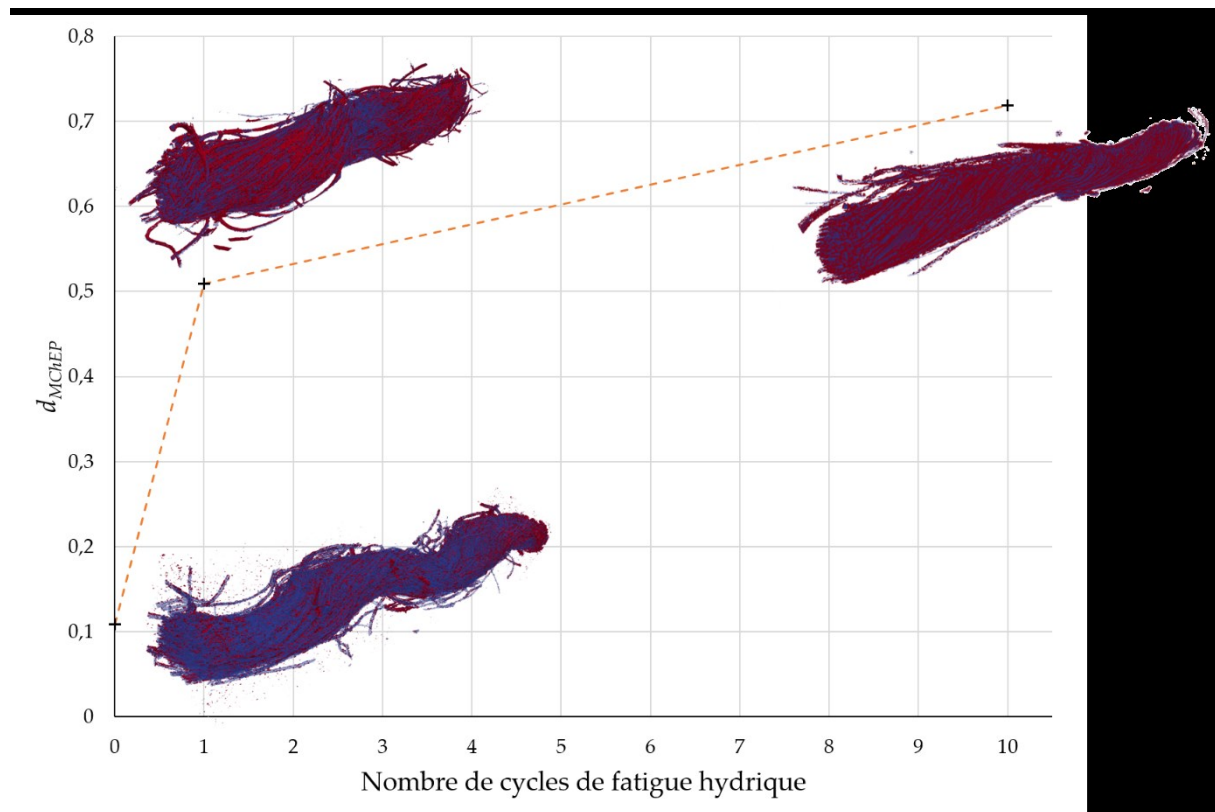


Figure VI.13 : Évolution de l'indicateur d'endommagement d_{MChEP} en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique pour des éprouvettes monofilamentaires MChEP après rupture en traction, et segmentations 3D associées.

Les résultats montrent une augmentation de l'indicateur d'endommagement avec le nombre de cycles de fatigue hydrique, et une hausse très importante entre l'état non vieilli et l'état après 1 cycle de fatigue hydrique. Cela est conforme aux évolutions des propriétés mécaniques observées dans les composites tissés (partie V.3).

VI.2 Influence de la fatigue hydrique sur les mécanismes d'endommagement des composites

Dans cette partie, les endommagements dans les composites tissés sont analysés via différentes techniques : émission acoustique, MEB et microtomographie. Un des objectifs est de différencier les parts d'endommagement qui ont lieu pendant la fatigue hydrique de celles qui sont créées pendant la sollicitation mécanique.

VI.2.1 Suivi *in-situ* par émission acoustique

VI.2.1.1 Pendant la fatigue hydrique

Afin de suivre l'évolution de l'endommagement pendant toute la durée de vie des éprouvettes, l'idéal serait de mesurer les émissions acoustiques des échantillons pendant toutes les phases d'absorption, de séchage et pendant la sollicitation mécanique. Cependant, pendant les phases d'absorption de la fatigue hydrique, des difficultés expérimentales n'ont pas permis d'exploiter les données d'émission acoustique. En effet, il n'a pas été possible de s'affranchir des bruits environnants tels que les vibrations au sein des étuves et des bacs, remplis d'eau. De plus, les capteurs et l'agent couplant doivent être compatibles avec une utilisation prolongée dans de l'eau à 60°C. En revanche, des mesures d'émission acoustique ont pu être effectuées pendant la phase de séchage de chaque cycle de fatigue hydrique, chaque phase de séchage correspondant à une durée de deux jours en étuve à 40°C.

Dans un premier temps, un essai de référence a été réalisé, consistant à enregistrer pendant deux jours dans l'étuve à 40°C les émissions acoustiques d'une éprouvette chanvre/Epilam préalablement stockée à l'ambiante. Il a ainsi été vérifié qu'aucun évènement acoustique ne s'était produit. Ainsi, les évènements acoustiques qui seront enregistrés pendant les phases de séchage proviendront bien uniquement de la création d'endommagements lors de la désorption après saturation en eau.

Les résultats d'émission acoustique obtenus pendant les séchages successifs des éprouvettes chanvre/Epilam $\pm 45^\circ$ et verre/Epilam $\pm 45^\circ$ sont présentés sur la Figure VI.14, avec l'énergie absolue cumulée en Figure VI.14a et le nombre d'évènements acoustiques en Figure VI.14b.

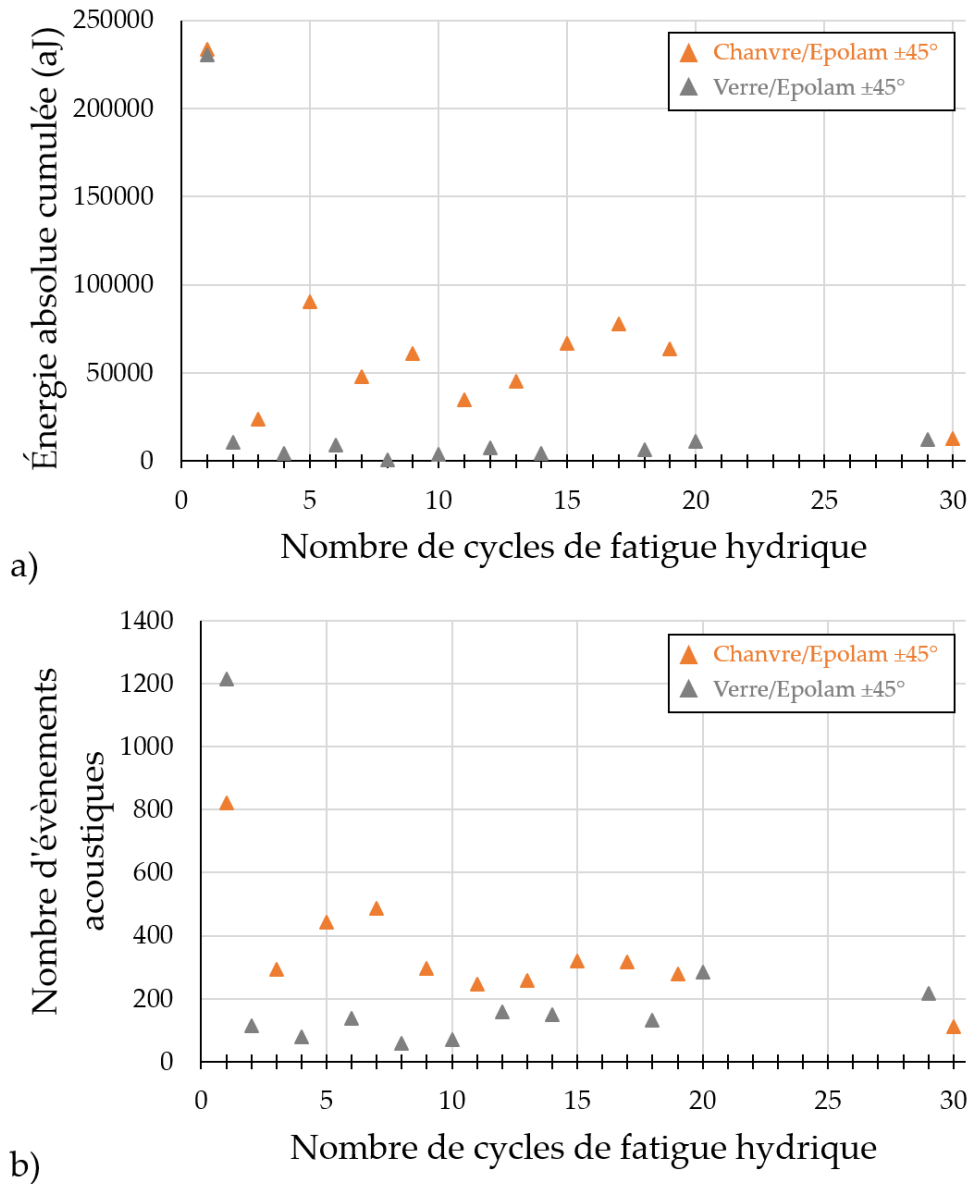


Figure VI.14 : a) Énergie absolue cumulée et b) nombre d'évènements acoustiques enregistrés pendant les phases de séchage de la fatigue hydrique pour des éprouvettes chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ et verre/Epolam $\pm 45^\circ$.

La Figure VI.14a montre que l'énergie émise pendant la 1^{ère} phase de séchage est indépendante du renfort (verre ou chanvre) et se situe aux alentours de 230 fJ (femtojoules). Pour comparaison, une éprouvette chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ non vieillie émet 5600 fJ pendant la sollicitation mécanique avant de rompre. L'énergie émise pendant la phase de séchage est donc 25 fois plus faible. À partir du deuxième cycle de fatigue hydrique, l'énergie absolue cumulée émise pendant les phases de séchage par les composites verre/Epolam devient quasiment nulle. Celle émise par les composites chanvre/Epolam a tendance à décroître pour atteindre une valeur proche de celle des éprouvettes verre/Epolam après 30 cycles de fatigue hydrique. Les tendances sont les mêmes en termes de nombre d'évènements acoustiques (Figure VI.14b) : un grand nombre d'évènements acoustiques apparaît dès le 1^{er}

séchage de la fatigue hydrique, puis les composites chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ ont besoin de plus de cycles de fatigue hydrique que les composites verre/Epolam pour se stabiliser vers une faible valeur. En revanche, l'éprouvette verre/Epolam $\pm 45^\circ$ émet un plus grand nombre d'évènements acoustiques lors du premier cycle de fatigue hydrique. Cela signifie que les évènements acoustiques émis par l'éprouvette verre/Epolam sont moins énergétiques que ceux émis par l'éprouvette chanvre/Epolam. En effet, pour l'éprouvette chanvre/Epolam, 800 évènements acoustiques suffisent pour atteindre une énergie absolue cumulée du même niveau que celui atteint par l'éprouvette verre/Epolam. Si les évènements acoustiques sont plus énergétiques, alors cela traduit un endommagement plus sévère pour les éprouvettes chanvre/Epolam lors des phases de séchage que pour les éprouvettes verre/Epolam. Ce pré-endommagement créé pendant les phases de séchage aura un impact important sur les performances des éprouvettes dès les premiers instants de la sollicitation mécanique. Ainsi, l'évolution des modules d'Young, avec une forte baisse dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique (Figures V.12a et V.12b), peut être expliquée par une création d'endommagement importante dès le 1^{er} séchage.

VI.2.1.2 Pendant la sollicitation mécanique

Les vitesses des ondes acoustiques au sein des composites tissés ont tout d'abord été mesurées pour chaque configuration, avant le lancement des essais mécaniques. La Figure VI.15 présente les vitesses des ondes acoustiques pour l'ensemble des composites testés pour un nombre de cycles de fatigue hydrique allant de 0 (non vieilli) à 30. Les valeurs de vitesse d'onde pour les composites non vieillis sont celles du Tableau III.4. On peut d'abord remarquer le fait que les composites à renfort orienté à $0^\circ/90^\circ$ admettent une vitesse d'onde acoustique supérieure à celle des composites à renfort orienté à $\pm 45^\circ$, quel que soit le nombre de cycles de fatigue hydrique et quelle que soit la nature du renfort. Cela confirme que ce sont préférentiellement les renforts qui guident les ondes acoustiques dans le matériau. La Figure VI.15 montre également que, pour tous les matériaux, la vitesse des ondes acoustiques diminue dès le premier cycle de fatigue hydrique. Ce sont les composites chanvre/Epolam et chanvre/Elium qui sont les plus affectés par la fatigue hydrique, et ce dès le 1^{er} cycle. En effet, en moyennant la perte de vitesse des composites d'orientation $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$, les composites chanvre/Epolam et chanvre/Elium perdent en moyenne, respectivement, 24% et 34% de leur vitesse d'onde acoustique initiale. En fin de vieillissement hydrique, les pertes pour ces deux composites sont sensiblement les mêmes qu'au premier cycle (28% et 36%). Les composites verre/Epolam connaissent également leur plus forte baisse de vitesse d'onde acoustique dès le premier cycle. En revanche, cette baisse s'élève seulement à environ 10%. Enfin, la vitesse d'onde acoustique diminue progressivement pour les composites chanvre/Greenpoxy pour atteindre des pertes de 8% et 16% après, respectivement, 1 et 30 cycles de fatigue hydrique.

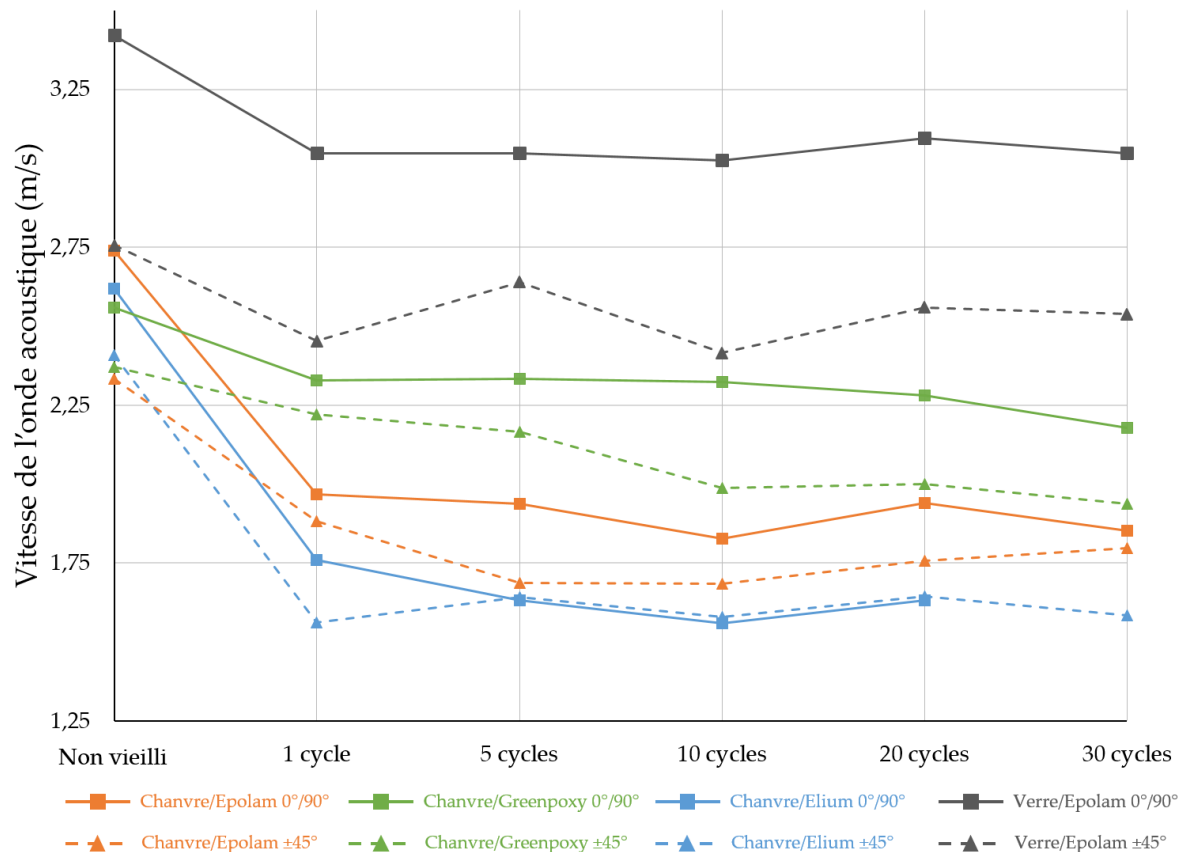


Figure VI.15 : Vitesses des ondes acoustiques mesurées avant traction pour les composites tissés non vieillis et après différents nombres de cycles de fatigue hydrique.

Comme pour les parties précédentes, l'énergie acoustique cumulée est la variable utilisée pour comparer les cinétiques d'endommagement des composites au cours de la fatigue hydrique. La Figure VI.16 regroupe les courbes d'évolution de l'énergie absolue cumulée normée en fonction de la contrainte axiale pour les composites chanvre/Epolam 0°/90° et chanvre/Greenpoxy 0°/90° (Figure VI.16a) et chanvre/Elium 0°/90° (Figure VI.16b). Les enregistrements effectués après 1, 10 et 30 cycles de fatigue hydrique (20 pour les composites chanvre/Elium 0°/90°) sont comparés aux résultats des composites non vieillis (issus de la Figure III.9a). La Figure VI.17 concerne quant à elle les composites chanvre/Epolam ±45° et chanvre/Greenpoxy ±45° (Figure VI.17a) et chanvre/Elium ±45° (Figure VI.17b).

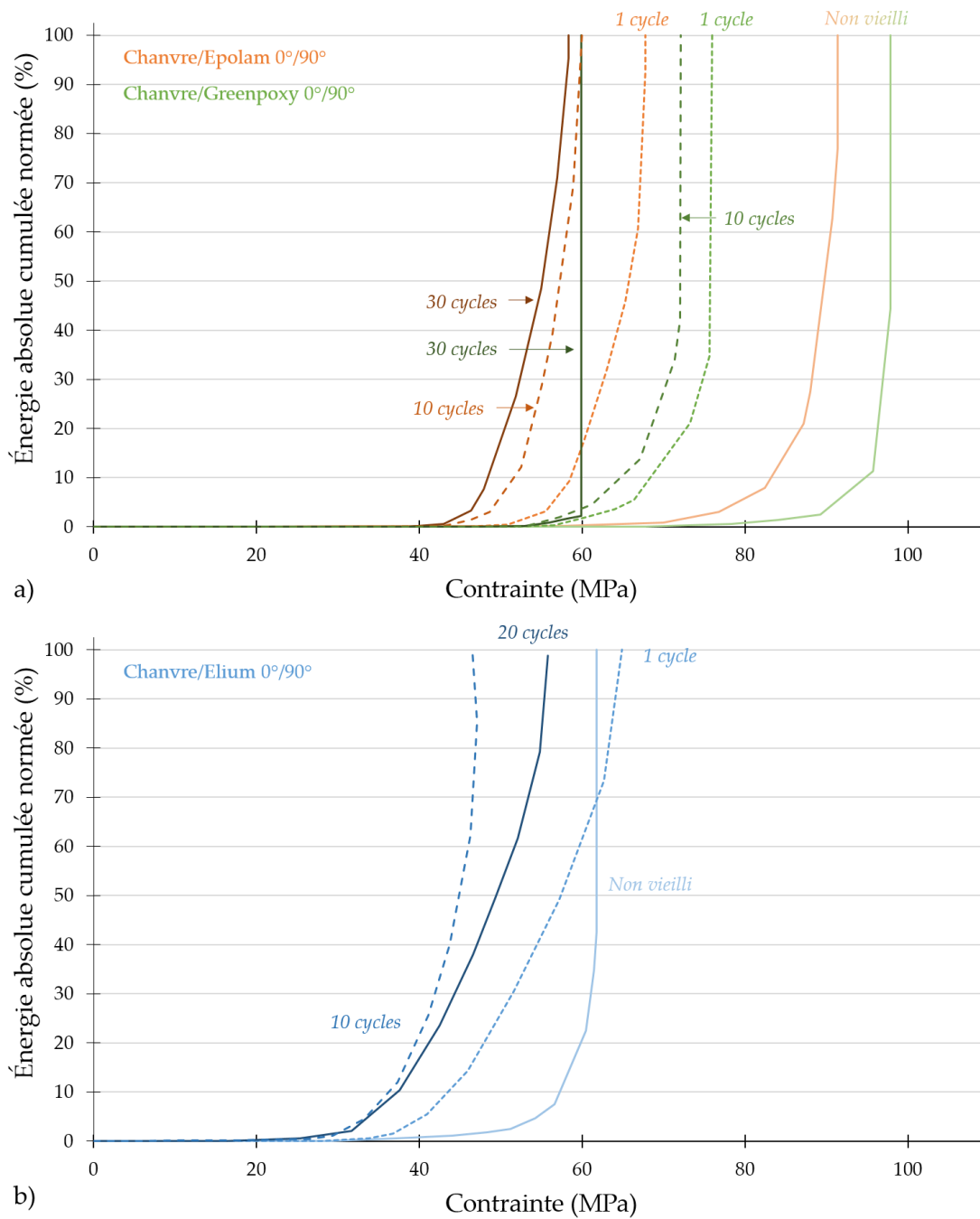


Figure VI.16 : Énergie acoustique cumulée normée en fonction de la contrainte appliquée pour les composites a) chanvre/Epolam 0°/90° et chanvre/Greenpoxy 0°/90° et b) chanvre/Elium 0°/90°, non vieillis et après 1, 10 et 20 ou 30 cycles de fatigue hydrique.

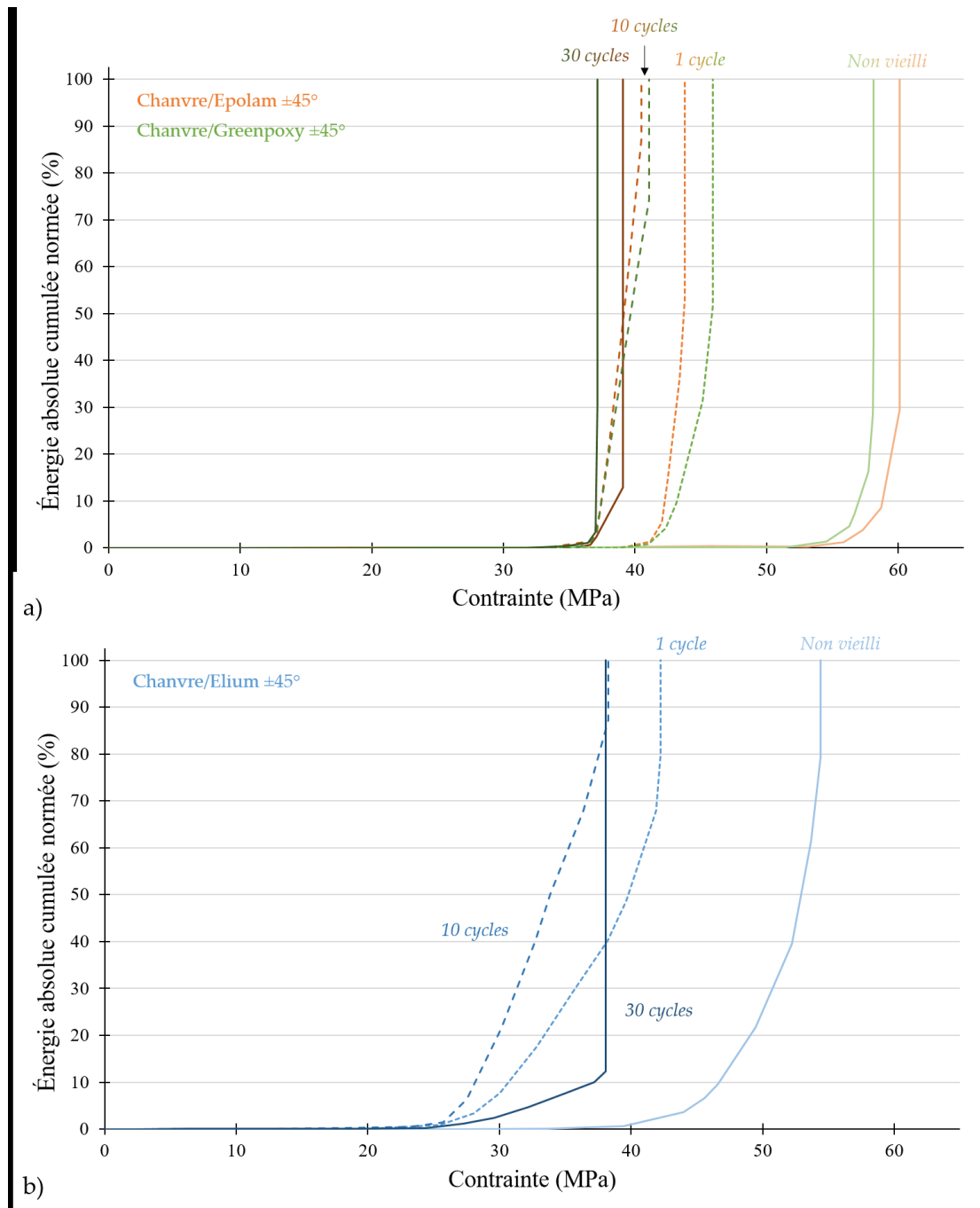


Figure VI.17 : Énergie acoustique cumulée normée en fonction de la contrainte appliquée pour les composites a) chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ et chanvre/Greenpoxy $\pm 45^\circ$ et b) chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$, non vieillis et après 1, 10 et 30 cycles de fatigue hydrique.

On observe dans les Figures VI.16 et VI.17 que la fatigue hydrique accélère l'apparition des événements acoustiques de haute énergie (décalage des courbes vers la gauche). De plus, on constate que les évolutions sont plus progressives dans le chanvre/Elium que dans les composites à matrice thermodure.

Pour quantifier ces différences de comportement, les valeurs du seuil à 5% de l'énergie acoustique (EA), défini en Figure III.8b, ont été déterminées pour l'ensemble des composites à

renfort de chanvre après i cycles de fatigue hydrique. Les résultats sont présentés dans la Figure VI.18. On constate, là encore, que le plus important recul de ce seuil intervient dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique, avec une perte comprise entre 25% et 35% pour tous les matériaux. Les valeurs des seuils pour le chanvre/Elium restent quant à elles toujours inférieures à celles mesurées dans les composites à résine époxy.

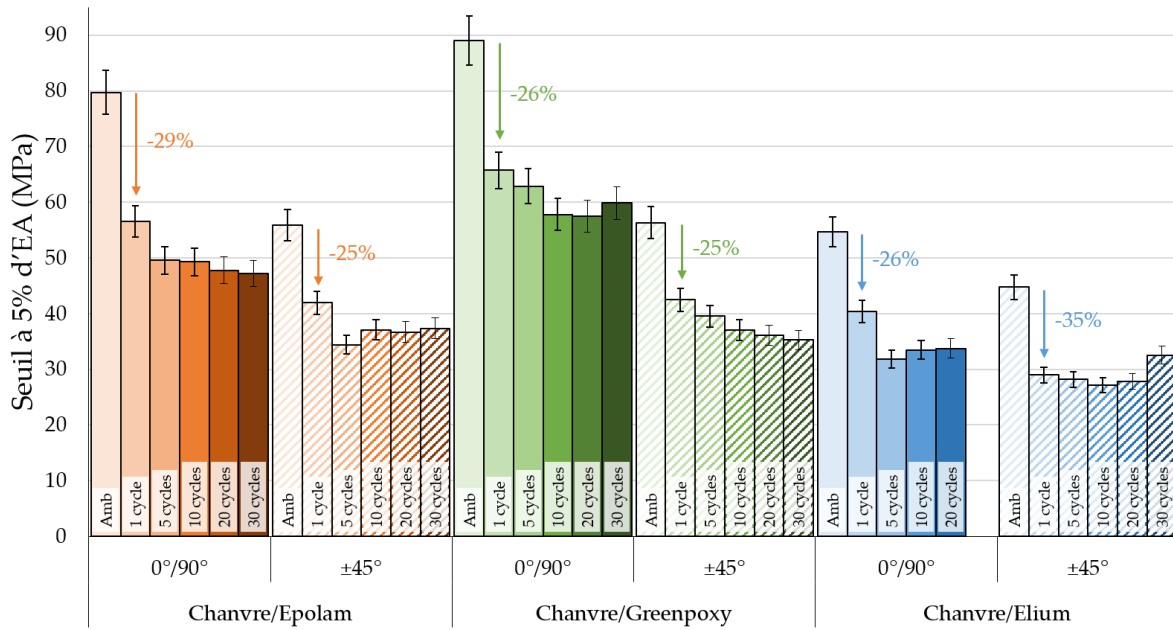


Figure VI.18 : Seuil à 5% d'EA pour l'ensemble des composites à renfort de chanvre non vieillis (Amb) et après i cycles de fatigue hydrique.

Ces résultats sur ces contraintes seuils permettent d'expliquer les chutes plus ou moins précoces des modules sécants lors des essais de traction sur les composites à renfort de chanvre (Figure V.15). En effet, la baisse des modules sécants démarre plus tôt pour tous les composites après fatigue hydrique, ce qui correspond bien à la chute de la contrainte seuil dès le premier cycle (Figure VI.18). De plus, les composites chanvre/Elium qui possèdent des contraintes seuils plus faibles voient effectivement leur module sécant diminuer pour des valeurs de contrainte plus petites. Ainsi, un lien semble pouvoir être établi entre l'apparition d'endommagements enregistrés par émission acoustique et l'évolution du module sécant au cours de l'essai pour tous les biocomposites, quelle que soit l'orientation considérée.

La même démarche a été appliquée aux composites à renfort de verre. La Figure VI.19 présente les courbes d'énergie absolue cumulée normée en fonction de la contrainte appliquée pour différents nombres de cycles de fatigue hydrique pour les composites verre/Epolam 0°/90° (Figure VI.19a) et verre/Epolam ±45° (Figure VI.19b). L'apparition des endommagements de haute énergie semblent également être accélérée avec l'augmentation du nombre de cycles de fatigue hydrique. Cependant, les résultats en termes de seuils à 5% d'EA sont plus difficiles à interpréter (Figure VI.20).

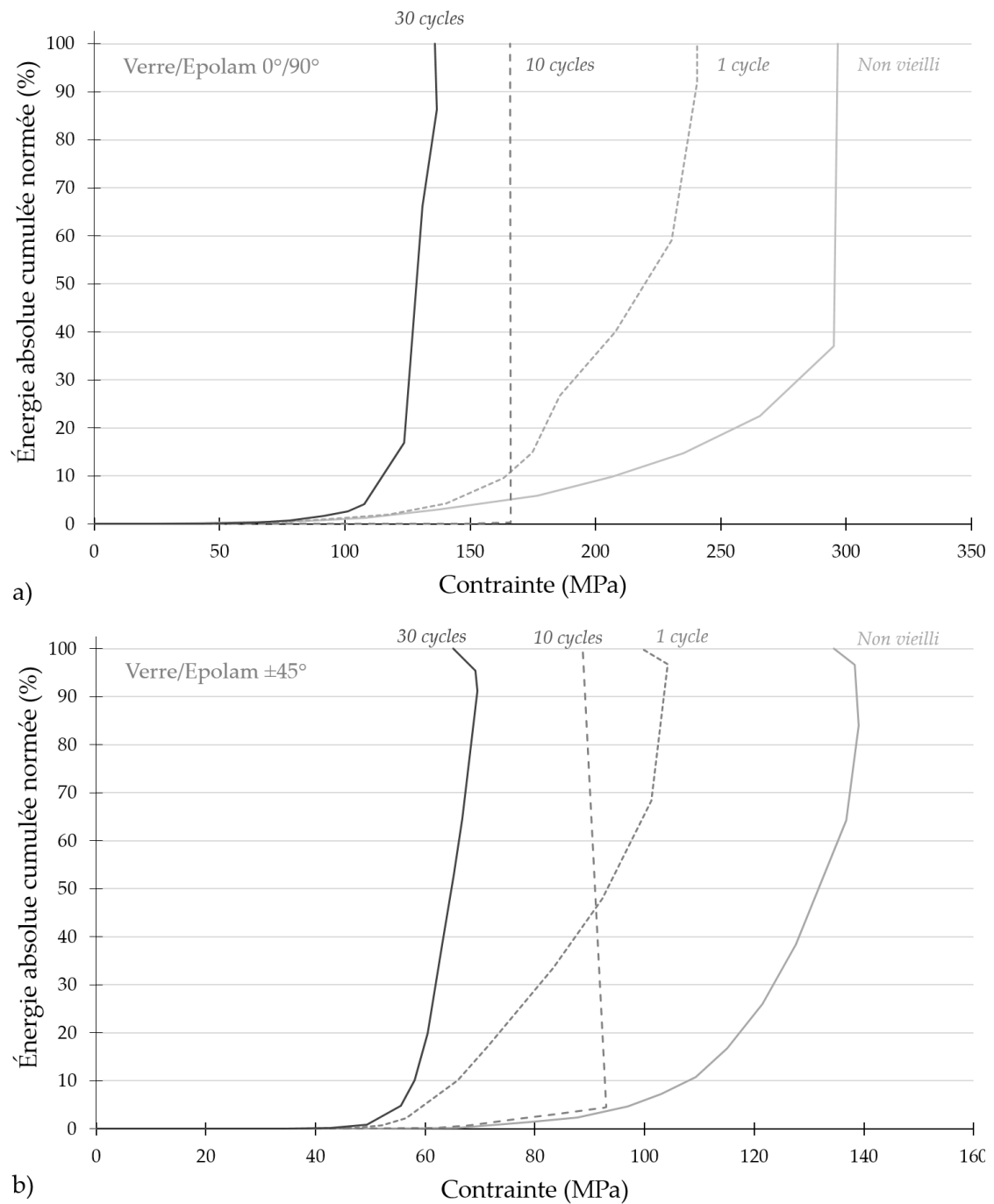


Figure VI.19 : Énergie absolue cumulée normée en fonction de la contrainte appliquée pour les composites à renfort de verre a) orientés à 0°/90° et b) orientés à ±45°, non vieillis et après 1, 10 et 30 cycles de fatigue hydrique.

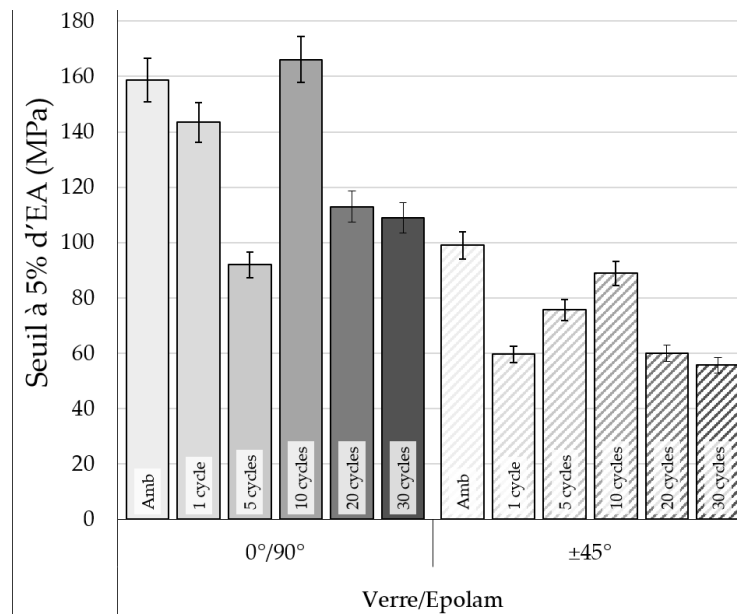


Figure VI.20 : Seuil à 5% d'EA pour les composites verre/Epilam 0°/90° et ±45° non vieillis et après i cycles de fatigue hydrique.

VI.2.2 Faciès de rupture

Des analyses des faciès de rupture après essai de traction ont été effectuées sur tous les composites tissés après 1 et 30 cycles de fatigue hydrique. Les Figures VI.21 et VI.22 présentent des exemples d'images obtenues, comparées à celles des matériaux non vieillis, pour, respectivement, l'orientation à 0°/90° et à ±45°. À noter que l'image de l'échantillon chanvre/Elium 0°/90° dans la colonne « 30 cycles » correspond en réalité au faciès de rupture après 10 cycles de fatigue hydrique. Les images pour l'état non vieilli sont celles montrées en Figure III.12.

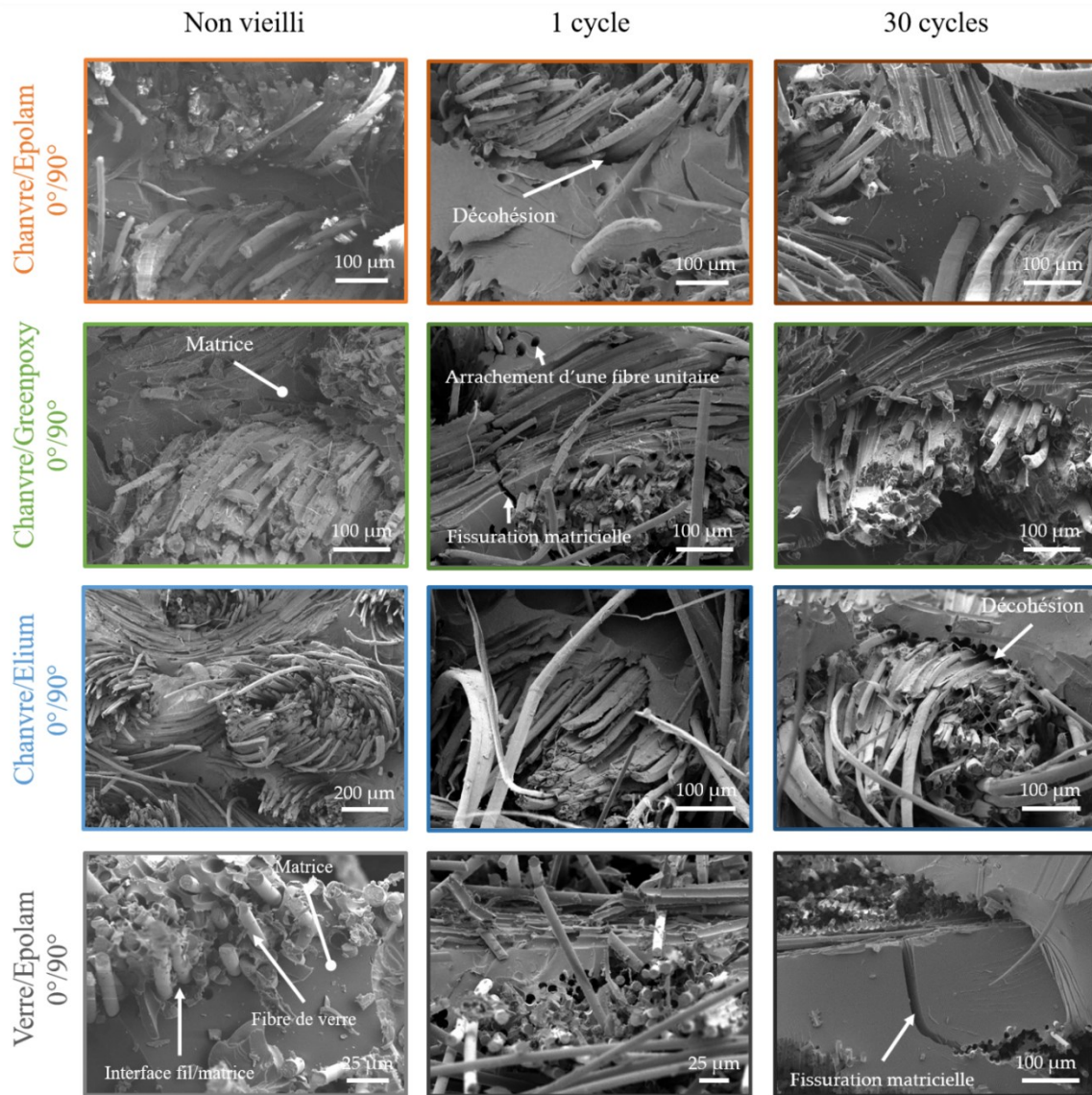


Figure VI.21 : Images au microscope électronique à balayage des faciès de rupture en traction des composites orientés à 0°/90° après 0 (non vieillis), 1 et 30 cycles de fatigue hydrique (10 cycles de fatigue hydrique pour chanvre/Elium 0°/90°).

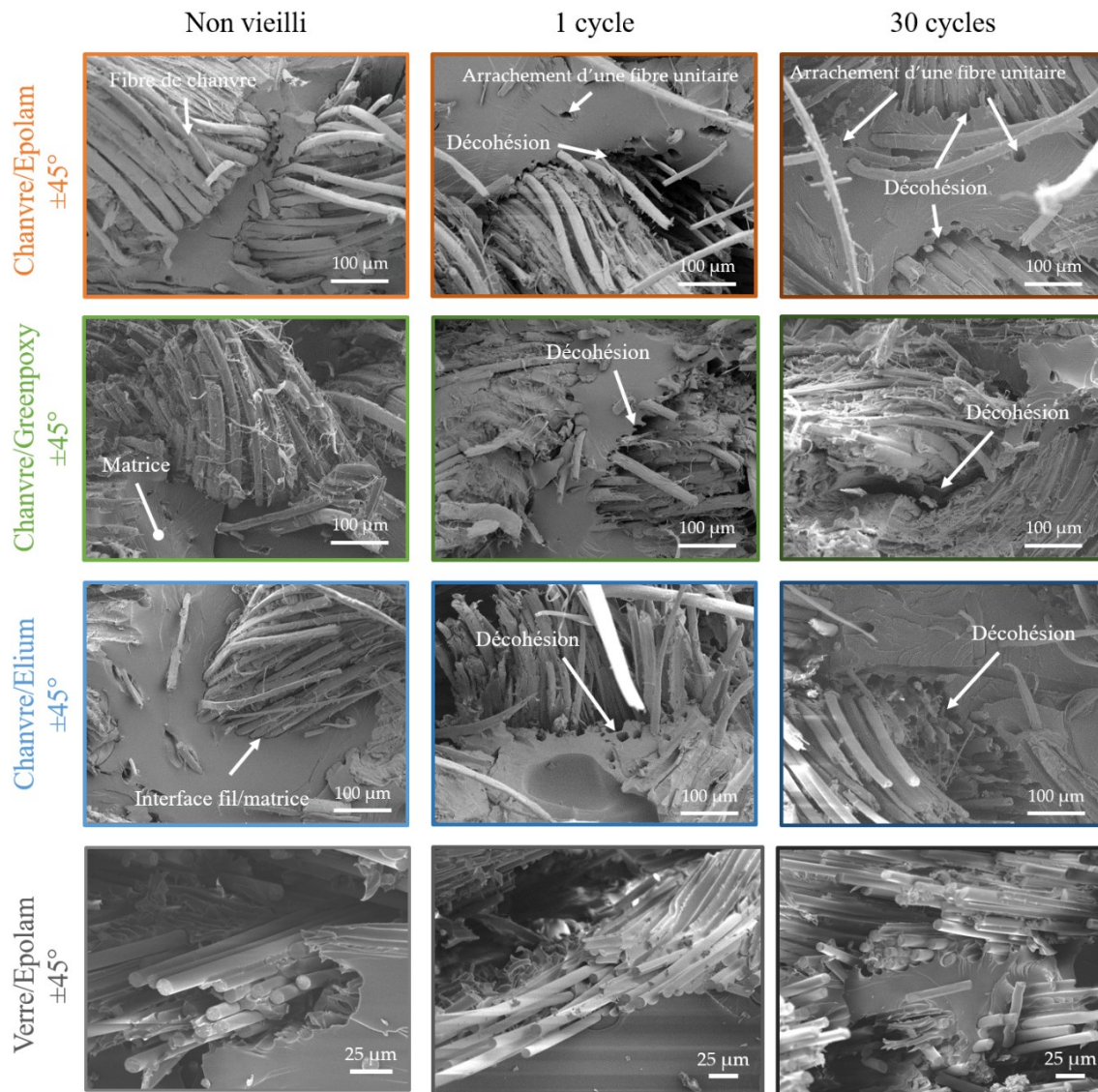


Figure VI.22 : Images au microscope électronique à balayage des faciès de rupture en traction des composites orientés à $\pm 45^\circ$ après 0 (non vieillis), 1 et 30 cycles de fatigue hydrique.

Les observations montrent des endommagements globalement similaires pour tous les composites à renfort de chanvre. Après 1 cycle de fatigue hydrique, les décohésions fil/matrice sont plus développées que pour un stockage ambiant. Des arrachements de fibres unitaires sont également observés. Après 30 cycles de fatigue hydrique, peu de différences sont observables par rapport à 1 cycle de fatigue hydrique. Pour les composites verre/Epolam, les interfaces fil/matrice semblent davantage préservées, les arrachements de fibres ayant lieu préférentiellement au sein des torons. Aussi, par rapport à l'état saturé en eau à 60°C (Figure IV.13), on remarque une présence plus prononcée de fissurations matricielles au niveau des faciès de rupture, particulièrement pour les composites $0^\circ/90^\circ$, quel que soit le type de renfort. Cette différence peut s'expliquer par le fait qu'après fatigue hydrique, la matrice n'est plus plastifiée par l'absorption en eau, ainsi, elle est plus fragile, ce qui entraîne la présence de ces fissures.

VI.2.3 Quantification de l'endommagement par microtomographie

Dans cette partie, seules les images tomographiques des éprouvettes de composite à renfort de chanvre ont été analysées. Comme indiqué en fin de partie III.3.3.3, les microtomographies des composites à renfort de verre ne sont pas exploitables.

Afin d'analyser de manière distincte les endommagements qui apparaissent pendant la fatigue hydrique de ceux apparaissant pendant les essais mécaniques, des acquisitions microtomographiques ont été effectuées avant et après essai mécanique pour différents nombres de cycles de fatigue hydrique. La résolution spatiale des images microtomographiques réalisées sur les composites tissés est de 15 μm . Les deux procédures décrites dans la partie II.4.3.2 ont été appliquées à l'ensemble des cas. La méthode « Sauvola » a permis une segmentation rapide d'une zone d'intérêt proche de la rupture de chaque échantillon. Couplée au code *Matlab* qui permet le décompte de l'ensemble des pixels segmentés, la démarche a permis de calculer le taux d'endommagement d_x^i (équation VI.1) :

$$d_x^i = \sum_{nb\ slices} \left[\left(\frac{P_{endo}^i}{P_{total}^i} \right)_{slice} \right]_x \quad (\text{VI.1})$$

où, pour une slice donnée, P_{endo}^i et P_{total}^i sont respectivement le nombre de pixels associés à de l'endommagement et le nombre total de pixels. i est le nombre de cycles de fatigue hydrique, et $x = 0$ si l'éprouvette n'a pas été testée mécaniquement et $x = r$ lorsque l'échantillon est rompu.

La seconde méthode, passant par l'utilisation du plugin *Trainable Weka Segmentation 3D* du logiciel *ImageJ* et le calculateur du *Méso-centre de calcul SPIN* de Poitou Charentes, permet la visualisation de la répartition volumique de l'endommagement au sein des éprouvettes dans chaque configuration.

Les évolutions du taux d'endommagement d_x^i ont été déterminées pour l'ensemble des composites à renfort de chanvre orienté à $0^\circ/90^\circ$ (Figure VI.23) et à $\pm 45^\circ$ (Figure VI.24) avant et après essai mécanique. Dans ces graphiques, les points reliés par des lignes pointillées représentent les taux d'endommagement avant essai mécanique d_0^i et les points reliés par des lignes continues correspondent aux taux d'endommagement des éprouvettes rompues d_r^i .

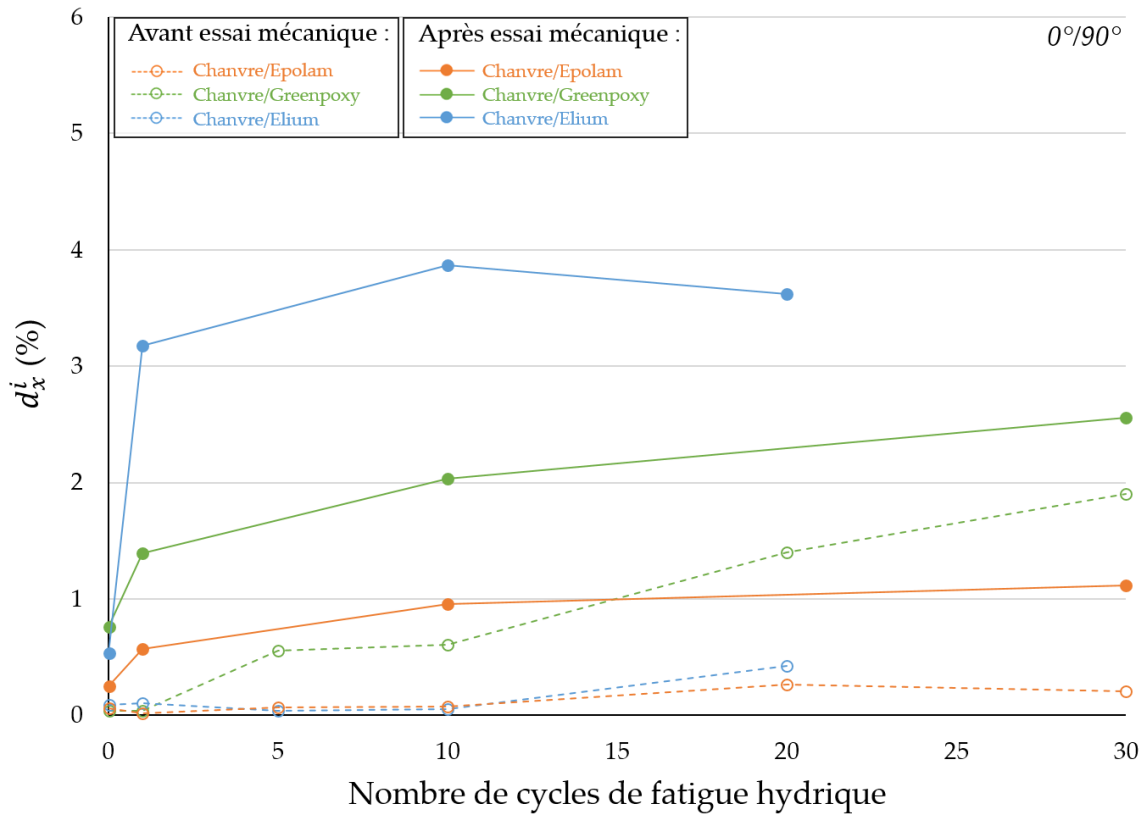


Figure VI.23 : Taux d'endommagement d_x^i déterminé par microtomographie dans les composites à renfort de chanvre orienté à $0^\circ/90^\circ$ en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique, avant et après rupture en traction.

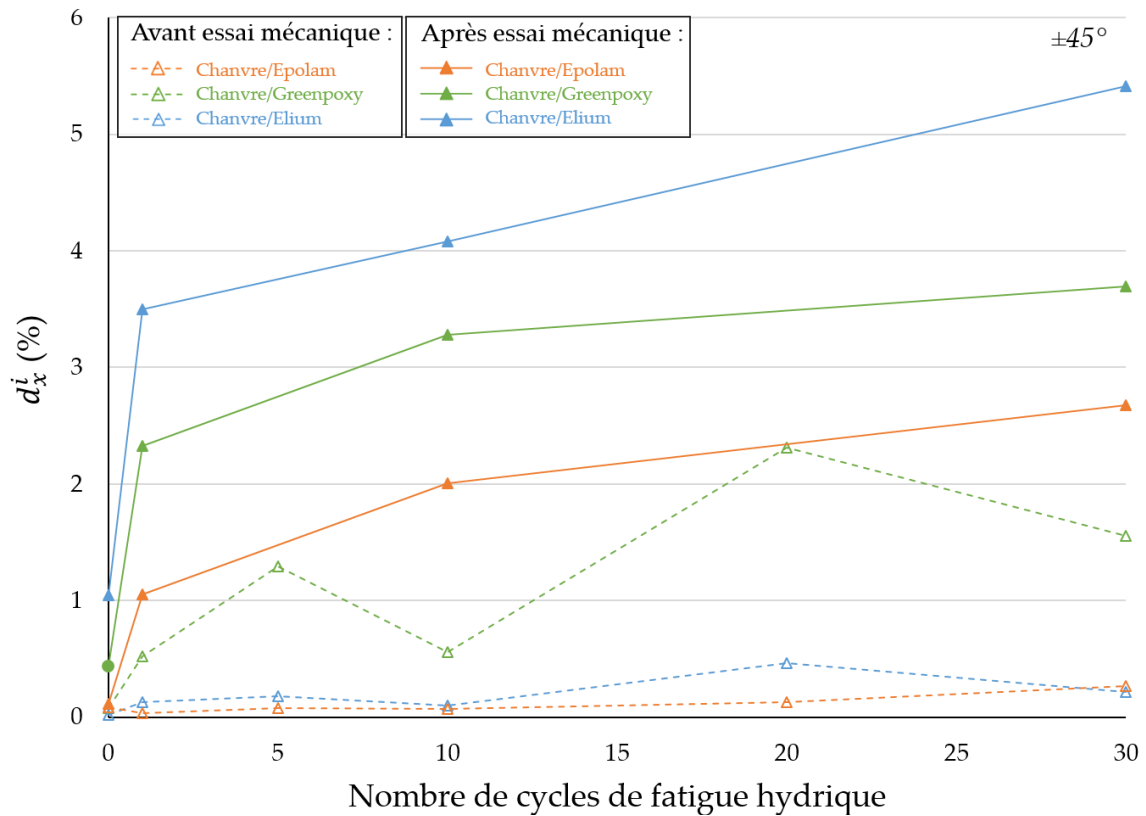


Figure VI.24 : Taux d'endommagement d_x^i déterminé par microtomographie dans les composites à renfort de chanvre orienté à $\pm 45^\circ$ en fonction du nombre de cycles de fatigue hydrique, avant et après rupture en traction.

Les résultats montrent tout d'abord que, pour tous les matériaux, le taux d'endommagement d_0^0 , qui correspond à l'endommagement présent au sein des éprouvettes après fabrication, est inférieur 0,1%. Cela confirme que les éprouvettes dans leur état initial sont saines, avec seulement quelques porosités et/ou manque d'imprégnation. Après fatigue hydrique et avant essai mécanique (lignes pointillées dans les Figures VI.23 et VI.24), le taux d_0^i a tendance à augmenter avec le nombre de cycles. À l'issue des 30 cycles de fatigue hydrique, le taux d'endommagement reste inférieur à 0,5% dans le cas des composites chanvre/Epolam et chanvre/Elium, mais atteint 2% dans les composites chanvre/Greenpoxy. La fatigue hydrique a donc créé davantage d'endommagement dans les composites chanvre/Greenpoxy, indépendamment de l'orientation des renforts.

Après rupture en traction, les composites non vieilliss (0 cycle de fatigue hydrique), admettent des taux d'endommagement inférieurs au pourcent, quelle que soit l'orientation des renforts (Figures VI.23 et VI.24). Cela montre que, même si quelques endommagements apparaissent pendant l'essai de traction, comme observé dans la partie III.3.3.3, ces endommagements restent très limités en nombre et en taille et représentent un très faible volume dans l'échantillon. Après fatigue hydrique, on constate que l'orientation des renforts a une influence sur l'évolution des taux d'endommagement d_r^i des composites après rupture en traction. En effet, quel que soit le nombre de cycles de fatigue hydrique ($i > 1$), ce sont les composites dont les renforts sont orientés à $\pm 45^\circ$ qui s'endommagent le plus (Figure VI.24). Après 30 cycles de fatigue hydrique, les composites chanvre/Elium présentent les taux d'endommagement d_r^{30} les plus élevés : 3,7% pour l'orientation $0^\circ/90^\circ$ (Figure VI.23, par extrapolation) et 5,4% pour l'orientation $\pm 45^\circ$ (Figure VI.24). Cela corrobore la plus forte dégradation de la rigidité des composites chanvre/Elium constatée dans le chapitre précédent (Figure V.12).

Pour illustrer la variation du taux d'endommagement au cours de la sollicitation mécanique, la Figure VI.25 présente l'évolution de ce taux au sein des composites après 30 cycles de fatigue hydrique, mesuré avant essai mécanique et après rupture. Les résultats montrent que, quel que soit le composite, l'augmentation du taux d'endommagement lors de la traction est plus importante pour l'orientation $\pm 45^\circ$ que pour la $0^\circ/90^\circ$. Ainsi, pour l'orientation $\pm 45^\circ$, le taux d'endommagement est multiplié par 10 dans les composites chanvre/Epolam, par 2,4 pour les chanvre/Greenpoxy et par 25 pour les composites chanvre/Elium. On remarque également que, quelle que soit l'orientation des renforts, les composites chanvre/Greenpoxy, qui admettent des taux d'endommagement d_0^{30} supérieurs à ceux des composites chanvre/Elium et chanvre/Epolam, sont ceux qui s'endommagent le moins pendant la traction. Deux hypothèses peuvent expliquer ce résultat. D'une part, l'important pré-endommagement de ces éprouvettes durant la fatigue hydrique peut entraîner un relâchement des contraintes internes du matériau, le rendant moins sensible au développement de nouveaux endommagements sous sollicitation mécanique. D'autre part, cela peut également signifier que le composite chanvre/Greenpoxy a une meilleure capacité à résister à la propagation des pré-endommagements créés par la fatigue hydrique lorsque celui-ci est sollicité en traction.

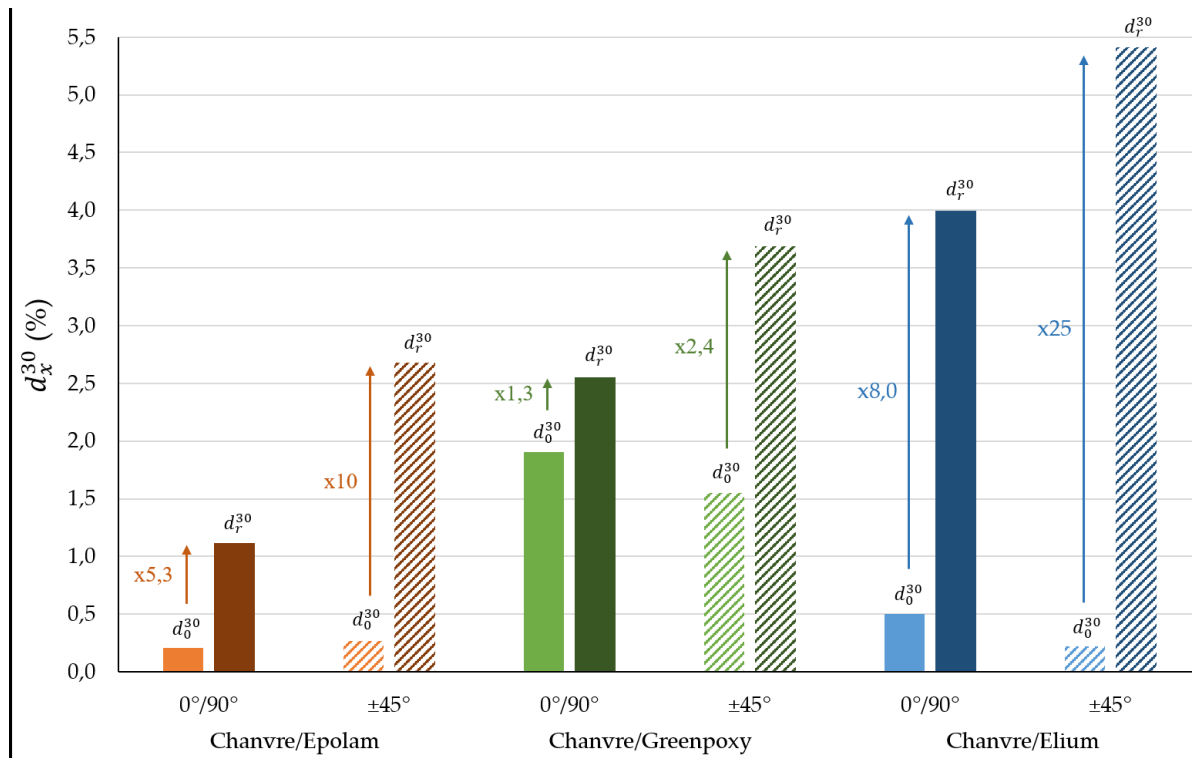


Figure VI.25 : Taux d'endommagement mesuré par microtomographie pour 30 cycles de fatigue hydrique (d_x^{30}), avant et après essai mécanique pour les composites à renfort de chanvre.

Les scans microtomographiques permettent aussi de visualiser en 3D les endommagements présents au cœur des composites, grâce aux volumes reconstitués. Outre l'aspect quantitatif, il est ainsi possible d'analyser la répartition des endommagements dans les composites et la nature des endommagements créés. Les images des Figures VI.26 à VI.29 sont des exemples des scans réalisés sur le chanvre/Epolam et le chanvre/Elium après 30 cycles de fatigue hydrique, avant et après rupture en traction. Une comparaison est effectuée avec les échantillons de référence, stockés à l'ambiante. La Figure VI.26 présente les reconstructions du volume scanné et les segmentations 3D associées pour les éprouvettes chanvre/Epolam ±45° à l'état ambiant et après 30 cycles de fatigue hydrique. De la même façon, la Figure VI.27 correspond aux éprouvettes chanvre/Epolam ±45° rompues en traction après un stockage ambiant et après 30 cycles de fatigue hydrique. Le QR Code en bas à droite de la Figure VI.27 offre une visualisation animée de ces volumes, accessible également via le lien [\[h8\]](#). Les volumes présentés correspondent à un parallélépipède rectangle aux dimensions suivantes : 2000 x 1300 x 250 pixels³, permettant d'englober la totalité de l'épaisseur des éprouvettes, presque toute la largeur et 30mm de longueur. Le nombre total de voxels par segmentation est donc d'environ 650 millions pour une résolution spatiale par voxel de 15 μm. On retrouve sur les volumes reconstruits les fils du tissu de chanvre, ici orientés à ±45°, de couleurs gris clair. Les endommagements segmentés sont représentés par des voxels rouges dans les volumes à droite. On constate à nouveau qu'à l'état initial, comme montré dans la Figure VI.25, très peu d'endommagements post-fabrication sont présents au sein des composites chanvre/Epolam,

hormis quelques porosités surtout localisées en surface du volume. Après 30 cycles de fatigue hydrique et sans aucune sollicitation mécanique, on observe l'apparition de nombreux endommagements, répartis dans toute la zone scannée (Figure VI.26).

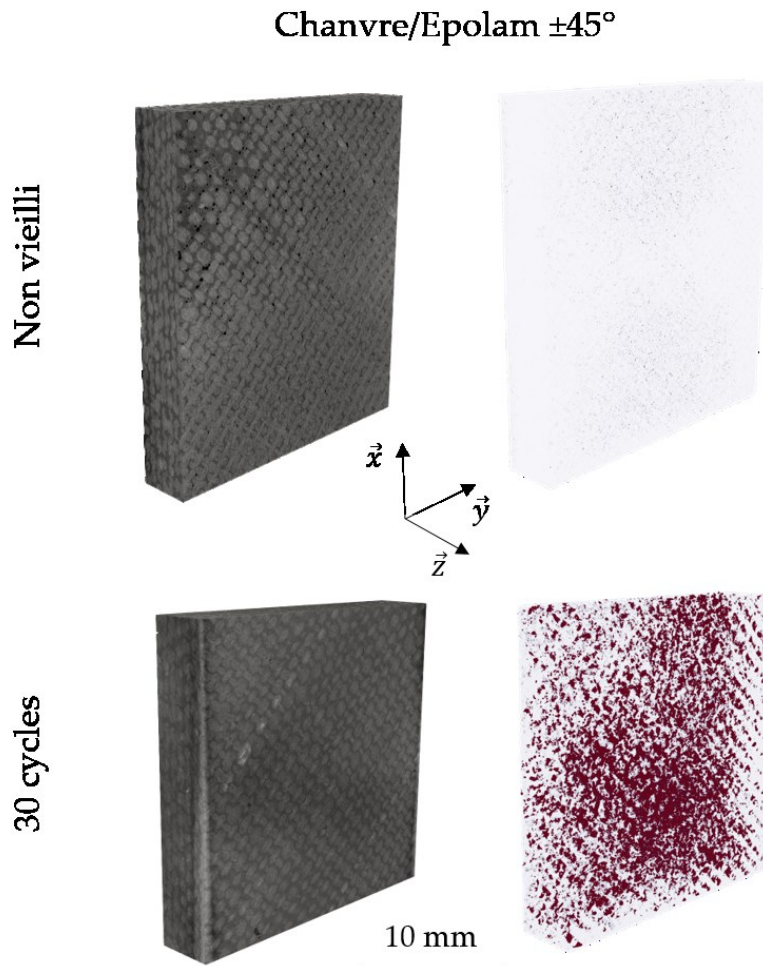


Figure VI.26 : Reconstructions volumiques des acquisitions microtomographiques et segmentations 3D des composites chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ à l'état non vieilli et après 30 cycles de fatigue hydrique, avant essai mécanique.

Après essai mécanique, les scans microtomographiques montrent des profils de rupture différents pour les échantillons non vieilli et vieilli par 30 cycles de fatigue hydrique (Figure VI.27). En effet, pour l'échantillon non vieilli, la rupture s'est globalement produite à 45° de l'axe de la sollicitation, ce qui montre que la rupture finale s'est produite suivant la direction des fils de chanvre. En revanche, après 30 cycles de fatigue hydrique, la rupture de l'échantillon est davantage perpendiculaire à la direction de traction, comme si les fils n'assuraient plus leur rôle de renfort. Les segmentations de la Figure VI.27 montrent également que, pour l'échantillon non vieilli, l'endommagement créé par la traction est localisé dans la zone de rupture et est globalement orienté à 45° . Dans le cas de l'éprouvette ayant subi

30 cycles de fatigue hydrique avant la sollicitation mécanique, les constatations sont très différentes : l'endommagement créé par la traction est réparti de manière plus homogène dans l'échantillon et est beaucoup plus important, ce qui correspond bien aux quantifications des taux d'endommagement présentées sur la Figure VI.24.

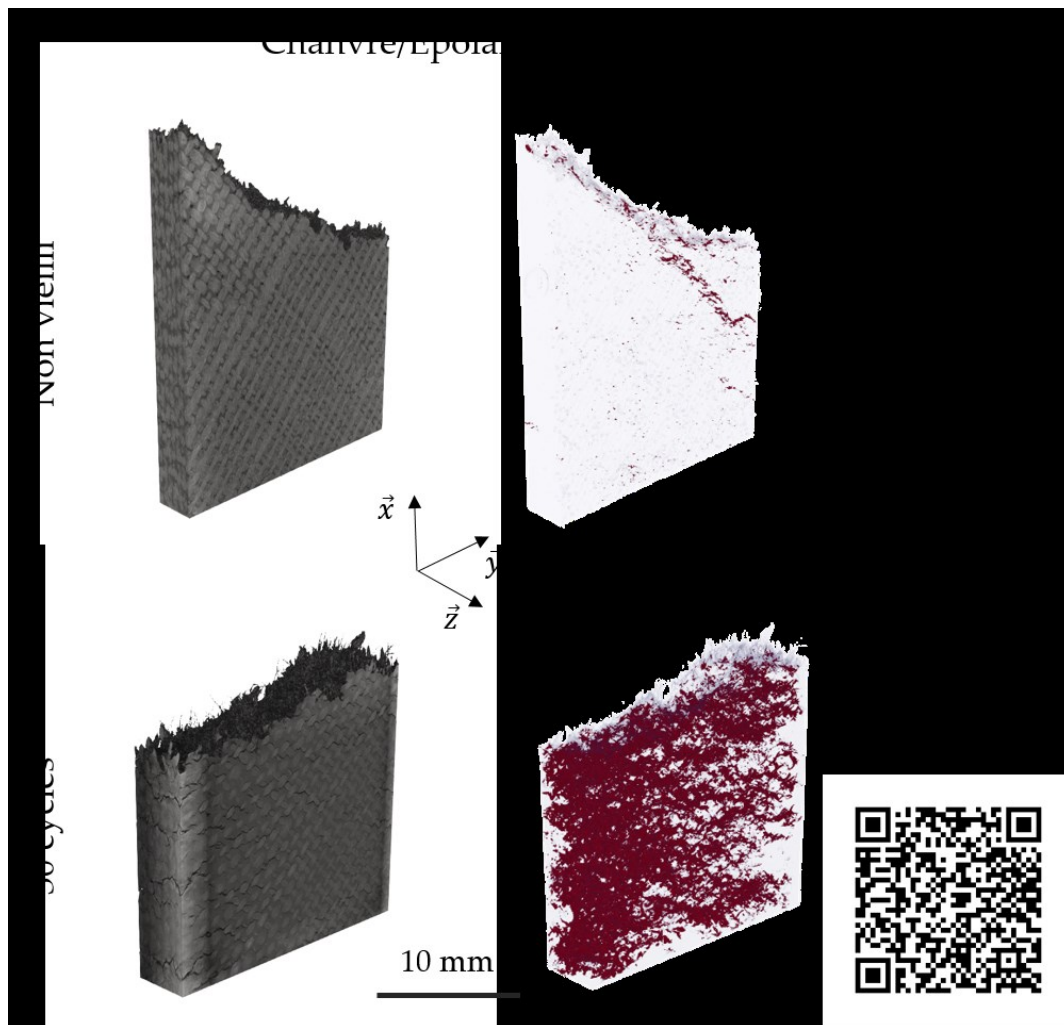


Figure VI.27 : Reconstructions volumiques des acquisitions microtomographiques et segmentations 3D des composites chanvre/Epola $\pm 45^\circ$ à l'état non vieilli et après 30 cycles de fatigue hydrique, après essai mécanique.

Les Figures VI.28 et VI.29 concernent les composites chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ non vieilli et après 30 cycles de fatigue hydrique, respectivement avant sollicitation mécanique et après rupture en traction. Le QR Code en bas à droite de la Figure VI.29 offre une visualisation animée de ces images 3D (accessible également via le lien [\[h9\]](#)). On observe là aussi des porosités dans le chanvre/Elium post-fabrication, ainsi que quelques zones de manque d'imprégnation visibles par les petits amas de voxels rouges. Après 30 cycles de fatigue hydrique, on retrouve, comme pour le chanvre/Epola, beaucoup plus d'endommagements que dans l'échantillon non vieilli et une distribution de ces endommagements dans tout le volume observé (Figure VI.28).

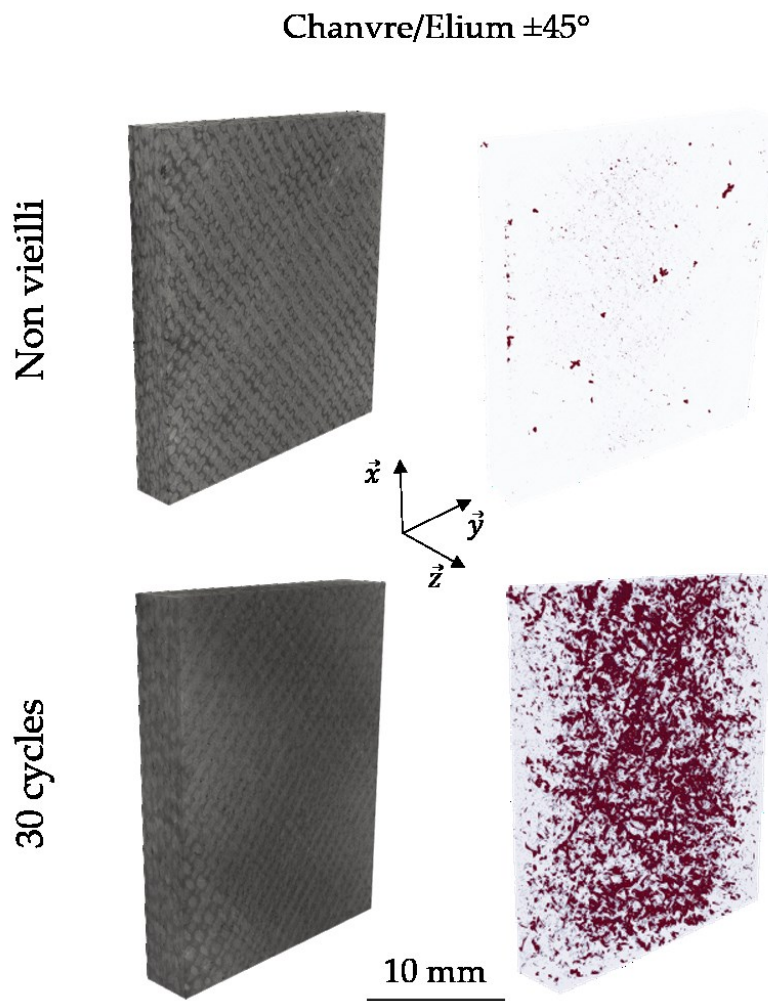


Figure VI.28 : Reconstructions volumiques des acquisitions microtomographiques et segmentations 3D des composites chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ à l'état non vieilli et après 30 cycles de fatigue hydrique, avant essai mécanique.

Après essai mécanique, la Figure VI.29 montre la création d'un endommagement beaucoup plus prononcé dans le composite chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ que dans le composite chanvre/Epilam $\pm 45^\circ$ (Figure VI.27), conformément aux quantifications de la Figure VI.24. On notera également que, pour l'échantillon non vieilli, les endommagements ne restent pas localisés près de la rupture mais sont répartis dans l'échantillon. Lors de la traction après 30 cycles de fatigue hydrique, les pré-endommagements issus du vieillissement se développent de façon très importante dans la totalité de l'échantillon, menant à un volume segmenté presque totalement rouge (Figure VI.29).

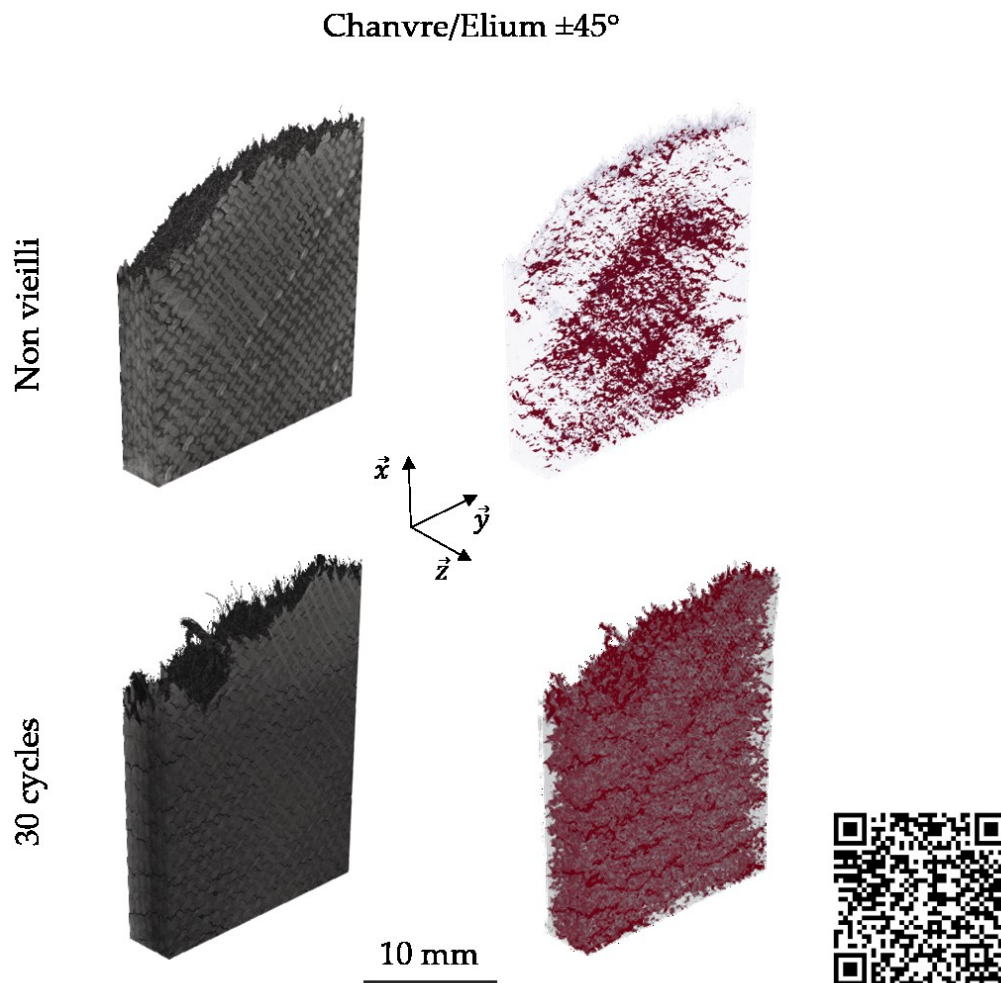


Figure VI.29 : Reconstructions volumiques des acquisitions microtomographiques et segmentations 3D des composites chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ à l'état non vieilli et après 30 cycles de fatigue hydrique, après essai mécanique.

Afin de visualiser plus précisément la nature des endommagements qui se développent dans les échantillons, des zooms des images précédentes, représentant un petit volume au cœur du matériau, sont présentés sur les Figures VI.30 et VI.31 pour les composites chanvre/Epalam $\pm 45^\circ$ et chanvre/Epalam $0^\circ/90^\circ$ ayant subi 30 cycles de fatigue hydrique, respectivement avant et après essai mécanique. Une version animée des volumes reconstruits et segmentés est disponible via le QR Code en bas à droite de la Figure VI.31 et via le lien [\[h10\]](#).

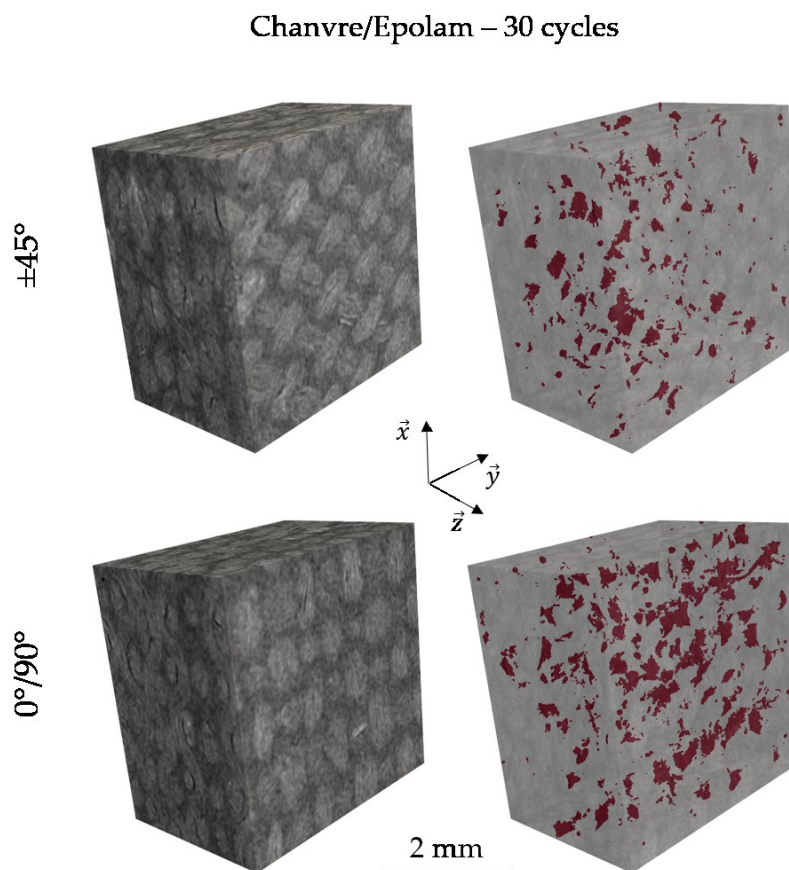


Figure VI.30 : Zooms sur les reconstructions volumiques des acquisitions microtomographiques et segmentations 3D des composites chanvre/Epolam ($\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$) après 30 cycles de fatigue hydrique, avant essai mécanique.

Avant sollicitation mécanique, ces images montrent que, quelle que soit l'orientation des renforts, les endommagements sont situés autour des fils de chanvre (Figure VI.30). La succession de 30 cycles de fatigue hydrique a donc bien créé principalement des décohésions fil/matrice dans les composites tissés, comme observé dans les éprouvettes monofilamentaires après un seul cycle (Figure VI.12).

Après rupture des échantillons en traction, on peut voir sur la Figure VI.31 que ces pré-endommagements se sont propagés lors de la sollicitation mécanique, créant de nouvelles décohésions fil/matrice. En se propageant, ces endommagements entraînent la création d'un réseau, constitué de décohésions fil/matrice reliées par des fissures matricielles. Les interfaces fil/matrice étant davantage sollicitées dans un composite $\pm 45^\circ$ que dans un $0^\circ/90^\circ$, cela explique l'augmentation plus importante du taux d'endommagement pour cette orientation (Figure VI.25).

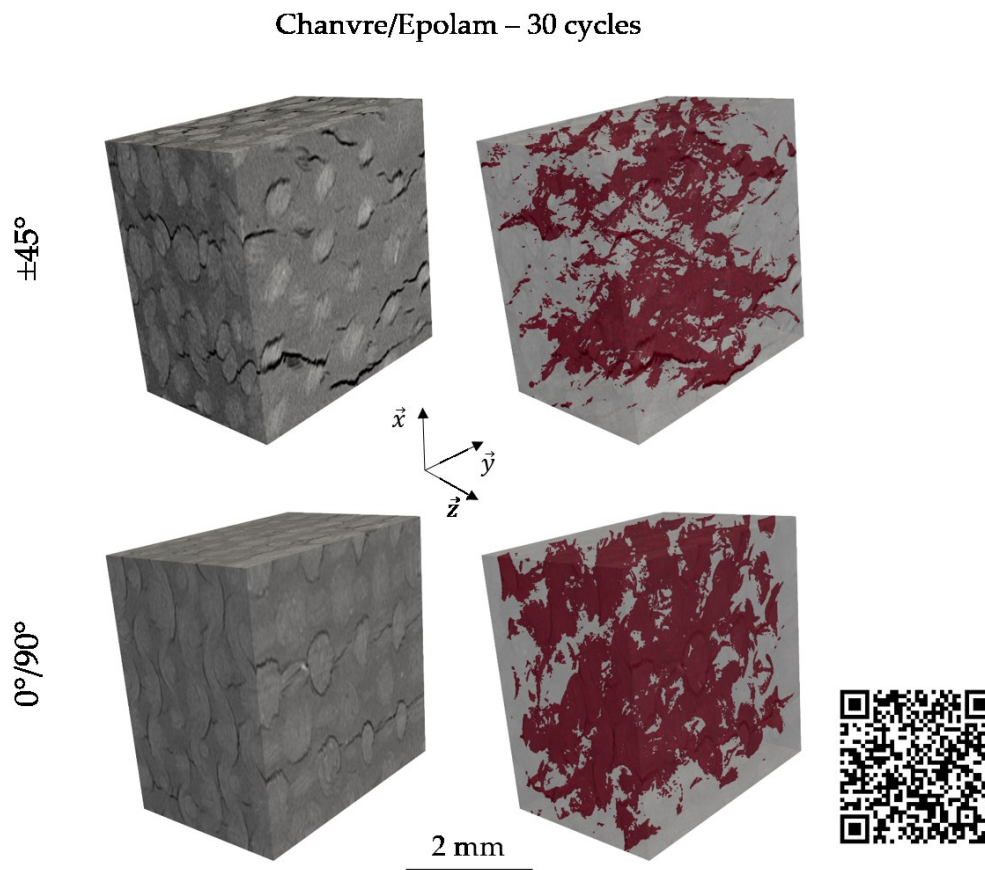


Figure VI.31 : Zooms sur les reconstructions volumiques des acquisitions microtomographiques et segmentations 3D des composites chanvre/Epolam ($\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$) après 30 cycles de fatigue hydrique, après essai mécanique.

Une visualisation des volumes segmentés sur la tranche est présentée sur la Figure VI.32 pour les composites chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$ après 30 cycles de fatigue hydrique et rupture en traction. Cette Figure montre que le réseau d'endommagement créé dans les composites $0^\circ/90^\circ$ se développe au sein de chaque pli de tissu, alors que dans le cas des composites $\pm 45^\circ$, il a tendance à se développer dans les trois directions de l'espace, passant d'un pli à l'autre. Ce phénomène est à relier aux taux d'endommagement d_r^i mesurés plus élevés dans les composites $\pm 45^\circ$ que dans les $0^\circ/90^\circ$ (Figures VI.23 et VI.24).

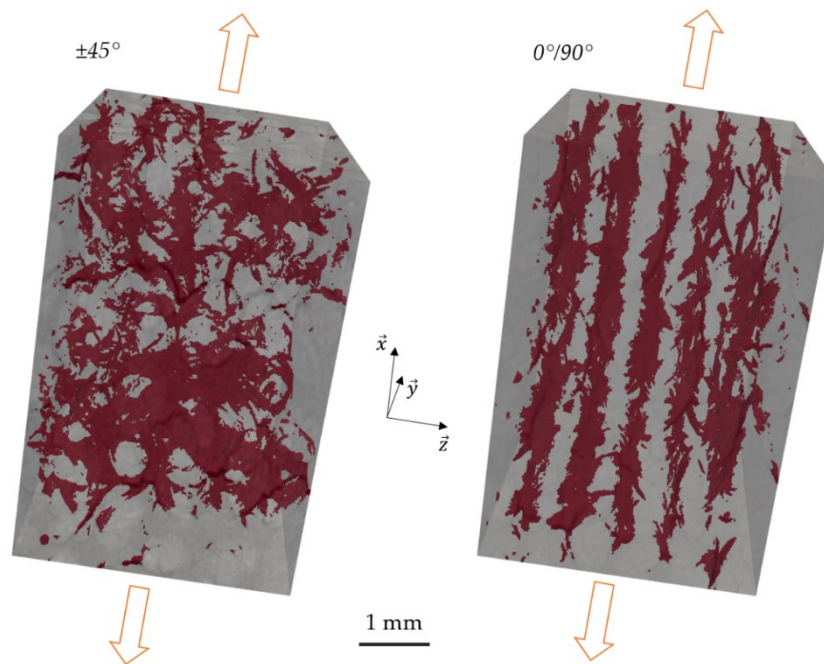


Figure VI.32 : Vues sur la tranche des segmentations volumiques des endommagements pour des éprouvettes rompues chanvre/Epolam $\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$ après 30 cycles de fatigue hydrique (axe de traction : \vec{x}).

VI.3 Rigidification des composites

L'objectif de cette partie est de comprendre les mécanismes qui entraînent les rigidifications observées pendant les essais de traction à chargements répétés progressifs sur les composites saturés en eau (Figure IV.9) et sur les composites vieillissés par fatigue hydrique (Figures V.15 et V.16).

VI.3.1 Les composites $[\pm 45^\circ]_7$

Le phénomène d'augmentation du module sécant en fin d'essai de traction dans les composites à $\pm 45^\circ$ est particulièrement visible dans le cas des composites chanvre/Elium (Figures IV.9c et V.15b) et des composites verre/Epolam (Figures VI.9d et V.16b). Dans la suite de cette partie, on s'intéressera au cas le plus critique observé : la rigidification des composites verre/Epolam $\pm 45^\circ$ saturés en eau à 60°C (Figure IV.9d). L'hypothèse avancée est une réorientation des fils de chaîne et de trame dans la direction de la sollicitation mécanique. La Figure VI.33 présente le mécanisme géométrique correspondant : au départ, dans chaque pli du composite, les fils de chaîne et de trame forment un angle $\theta = \theta_0 = 45^\circ$ (Figure VI.33a), puis pendant la sollicitation en traction selon l'axe \vec{x} , cet angle θ va diminuer (Figure VI.33b).

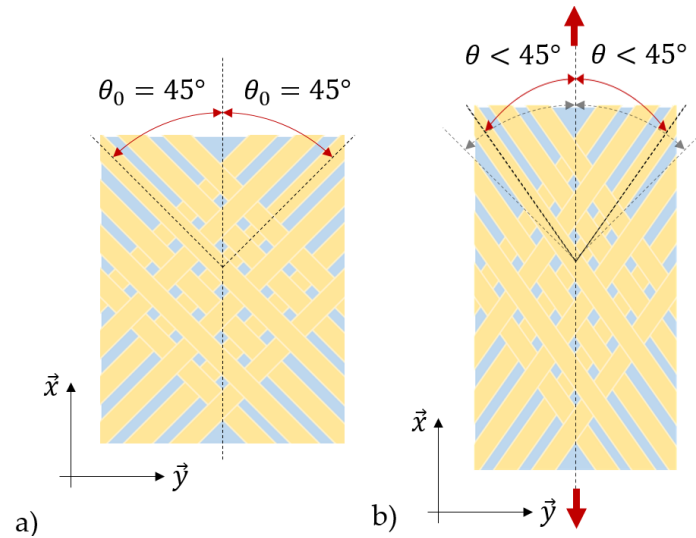


Figure VI.33 : Schématisation d'un pli de composite $\pm 45^\circ$ a) non chargé et b) sous charge.

Cette réduction de l'angle θ est régie par l'augmentation, en valeurs absolues, des déformations longitudinale, notée ϵ_{XX} , et transverse, notée ϵ_{YY} . L'équation VI.2 permet d'exprimer cette variation d'angle θ en fonction des déformations ϵ_{XX} et ϵ_{YY} subies par un pli de composite d'angle initial θ_0 [119] :

$$\cos(2\theta) = \cos(2\theta_0) + 2(\epsilon_{XX}\cos^2(\theta_0) - \epsilon_{YY}\sin^2(\theta_0)) \quad (\text{VI.2})$$

Lors des essais de traction, les déformations ϵ_{XX} et ϵ_{YY} ont été mesurées par un extensomètre bi-axial. Il est ainsi possible de calculer l'évolution de l'angle θ tout au long de l'essai, en fonction des déformations mesurées et donc de la contrainte appliquée. La courbe ainsi obtenue pour une éprouvette verre/Epolam $\pm 45^\circ$ saturée en eau à 60°C est présentée dans la Figure VI.34. Les résultats montrent que, en fin d'essai, l'angle θ est réduit d'environ 13° pour atteindre la valeur $\theta = 32,2^\circ$.

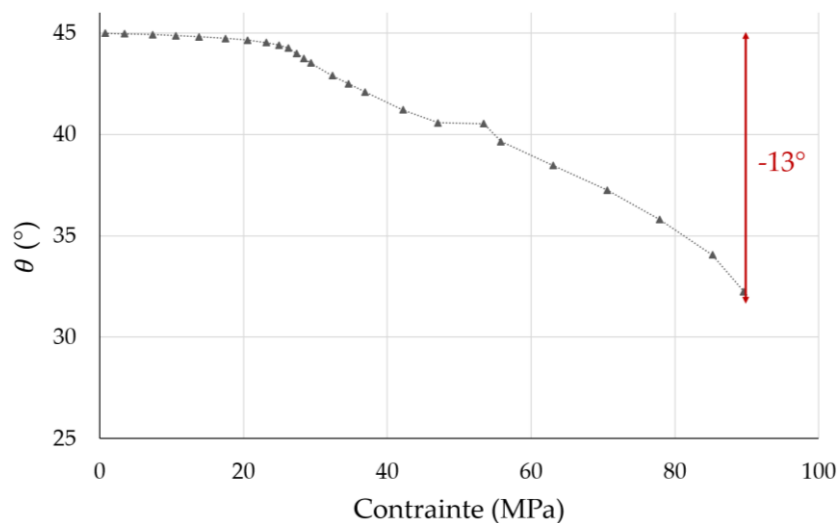


Figure VI.34 : Courbe d'évolution de l'angle θ en fonction de la contrainte appliquée lors d'un essai de traction sur une éprouvette verre/Epolam $\pm 45^\circ$ saturée en eau à 60°C .

L'étape suivante est de quantifier la part de rigidification due à ces variations d'angle θ . Pour cela, les équations de la théorie des stratifiés sont utilisées. L'équation VI.3 permet d'exprimer le module élastique E_x selon l'axe \vec{x} d'un composite en fonction de l'angle θ , via l'équation VI.4 qui définit les coefficients A_{ij} et les équations des coefficients de raideurs Q_{ij} (équations VI.5, VI.6 et VI.7). Dans les équations VI.5 à VI.7, les notations c et s désignent les fonctions \cos et \sin [120] :

$$E_x = \frac{A_{11} \times A_{22} - A_{12}^2}{e_c \times A_{22}} \quad (\text{VI.3})$$

$$A_{ij} = \sum_{plis} Q_{ij} \times e_{pli} \quad (\text{VI.4})$$

$$Q_{11} = c^4 \bar{E}_l + s^4 \bar{E}_t + 2c^2 s^2 (\nu_{tl} \bar{E}_l + 2G_{lt}) \quad (\text{VI.5})$$

$$Q_{22} = s^4 \bar{E}_l + c^4 \bar{E}_t + 2c^2 s^2 (\nu_{tl} \bar{E}_l + 2G_{lt}) \quad (\text{VI.6})$$

$$Q_{12} = c^2 s^2 (\bar{E}_l + \bar{E}_t - 4G_{lt}) + (c^4 + s^4) \nu_{tl} \bar{E}_l \quad (\text{VI.7})$$

avec :

$$\bar{E}_l = \frac{E_l}{1 - \nu_{lt} * \nu_{tl}} \quad (\text{VI.8})$$

$$\bar{E}_t = \frac{E_t}{1 - \nu_{lt} * \nu_{tl}} \quad (\text{VI.9})$$

Pour déterminer les coefficients de raideurs Q_{ij} , quatre données ont été déterminées à partir des essais de traction : \bar{E}_l , \bar{E}_t , ν_{lt} et G_{lt} . Le module de cisaillement G_{lt} a été mesuré à partir de la pente initiale de la courbe représentant la contrainte appliquée en fonction de $(\epsilon_{XX} - \epsilon_{YY})$, issue de l'essai mécanique sur l'éprouvette verre/Epilam $\pm 45^\circ$ saturée en eau à 60°C . Les modules longitudinal \bar{E}_l et transverse \bar{E}_t et le coefficient de Poisson ν_{lt} ont été calculés par la résolution du système S1 à trois équations et trois inconnues. Dans ce système, $E_x(\pm 45^\circ)$ et $\nu_{xy}(\pm 45^\circ)$ sont, respectivement, le module d'Young et le coefficient de Poisson mesurés lors de l'essai de traction sur l'éprouvette verre/Epilam $\pm 45^\circ$ saturée en eau à 60°C . L'essai de traction sur une éprouvette verre/Epilam $0^\circ/90^\circ$ saturée en eau à 60°C a quant à lui permis de fournir la donnée $E_x(0^\circ/90^\circ)$.

$$\begin{cases} E_x(\pm 45^\circ) = \frac{(\bar{E}_l + \bar{E}_t + 2\nu_{tl}\bar{E}_l) \cdot 4G_{lt}}{\bar{E}_l + \bar{E}_t + 2\nu_{tl}\bar{E}_l + 4G_{lt}} \\ \nu_{xy}(\pm 45^\circ) = \frac{\bar{E}_l + \bar{E}_t + \nu_{tl}\bar{E}_l - 4G_{lt}}{\bar{E}_l + \bar{E}_t + \nu_{tl}\bar{E}_l + 4G_{lt}} \\ E_x(0^\circ/90^\circ) = \frac{(\bar{E}_l + \bar{E}_t)}{2} \end{cases} \quad (\text{S1})$$

Il est ainsi possible de tracer l'évolution du module $E_x(\theta)$ provoquée par la variation de l'angle θ pour le composite verre/Epilam $\pm 45^\circ$ saturé en eau à 60°C ; la courbe marron dans la Figure VI.35 correspond à l'évolution de $E_x(\theta)$ normé. Cette courbe permet ensuite de corriger

la courbe expérimentale d'évolution du module sécant (courbe grise) en soustrayant l'effet rigidifiant dû à la réorientation des fils. On obtient alors l'évolution du module sécant dans le composite due uniquement au développement des endommagements (courbe noire dans la Figure VI.35).

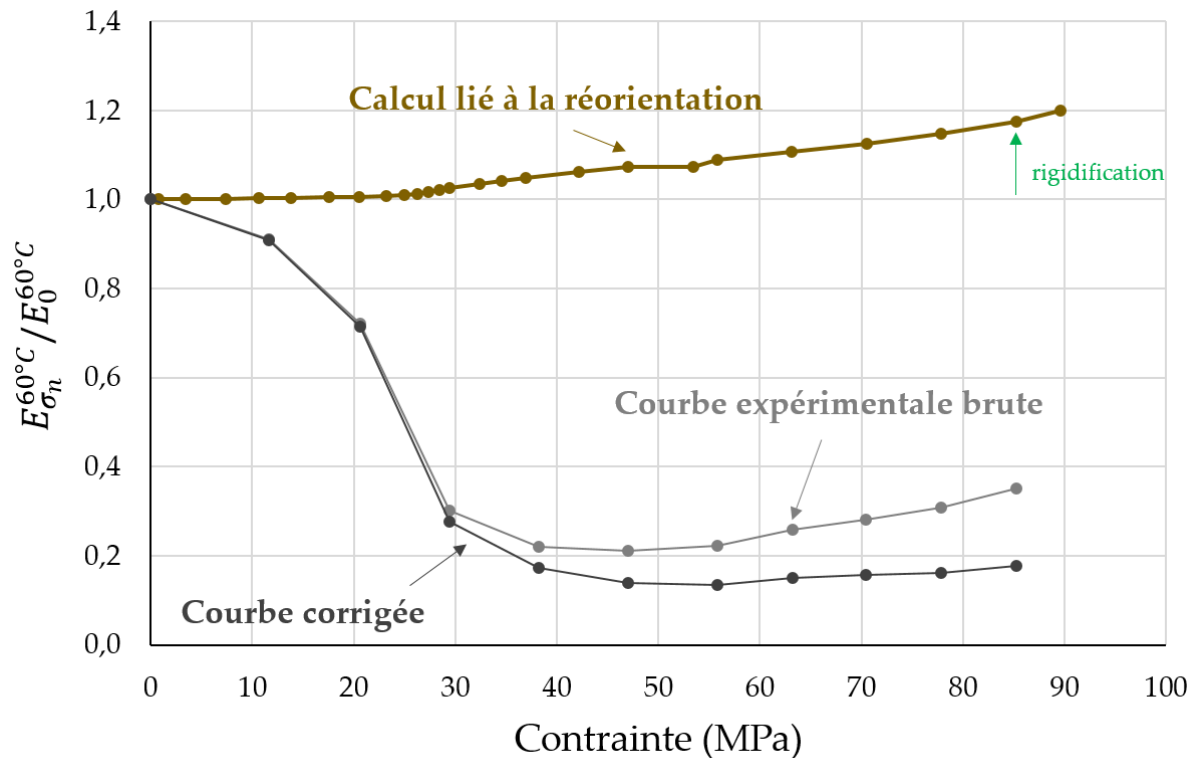


Figure VI.35 : Évolution du module sécant avec prise en compte de la rigidification due à la réorientation des fils de chaîne et de trame dans la direction de traction pour l'éprouvette verre/Epilam $\pm 45^\circ$ saturée en eau à 60°C .

Les résultats montrent que la seule réorientation géométrique des fils du tissu conduit en fin d'essai à une rigidification du composite de l'ordre de 20% (Figure VI.35). On voit donc sur la courbe corrigée, qu'à partir d'une contrainte appliquée d'environ 45 MPa, correspondant à une déformation ϵ_{XX} de l'ordre de 8%, la croissance du module sécant est bel et bien due à la réorientation des fils de chaîne et de trame dans la direction de la traction. En effet, la courbe corrigée d'évolution du module sécant a plutôt tendance à se stabiliser en fin d'essai.

Au vu de ces résultats, on s'aperçoit que seuls les composites à $\pm 45^\circ$ dont la déformation longitudinale dépasse les 8% connaissent une augmentation de leur module sécant à partir de ce seuil. Cela montre donc que, quel que soit le matériau considéré, au-delà de 8% de déformation, la réorientation des renforts dans la direction de traction crée une rigidification suffisante pour contrecarrer le développement des endommagements. Ces conclusions permettent d'expliquer pourquoi ce phénomène se retrouve plus particulièrement dans les composites saturés en eau, qui présente alors une matrice polymère plastifiée, ou ayant subi des cycles de fatigue hydrique et contenant donc un pré-endommagement important.

VI.3.2 Les composites $[0^\circ/90^\circ]_7$

VI.3.2.1 Essai de traction *in-situ* sous microtomographe

La rigidification en cours de sollicitation mécanique des composites $0^\circ/90^\circ$ a été observée sur les échantillons à renfort de chanvre, saturés en eau (Figure IV.9) ou après i cycles de fatigue hydrique (Figure V.15a). Ce phénomène est particulièrement prononcé pour le chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ après fatigue hydrique (Figure V.15a). Il a donc été décidé d'analyser cette rigidification pour des éprouvettes de chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ après 15 cycles de fatigue hydrique. Une première éprouvette a servi à réaliser un essai de traction à chargements répétés progressifs sur la machine de traction *Instron 5982* (Figure VI.36a), afin de déterminer la courbe d'évolution du module sécant correspondante (Figure VI.36b).

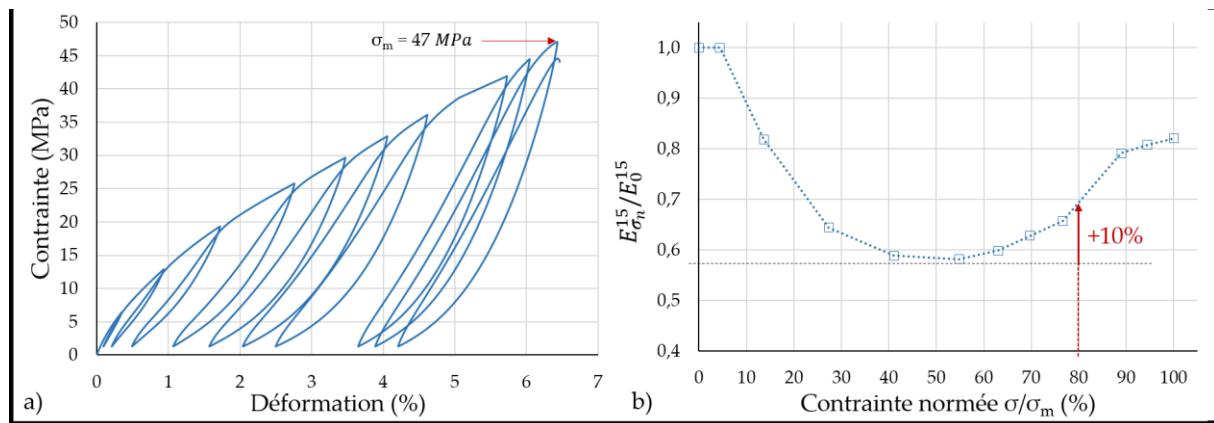


Figure VI.36 : Traction à chargements répétés progressifs sur une éprouvette chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ après 15 cycles de fatigue hydrique. a) Courbe contrainte-déformation et b) courbe d'évolution du module sécant en fonction de la contrainte normée.

Les résultats montrent une rigidification importante du composite, à partir d'une contrainte appliquée correspondant à environ 55% de la contrainte maximale, ce qui correspond à une déformation ϵ_{XX} de l'ordre de 3%.

La seconde éprouvette de chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ ayant subi 15 cycles de fatigue hydrique a quant à elle été soumise à un essai de traction dans le microtomographe en utilisant la machine de traction *MUTTOM*, décrite dans la partie II.4.3.3. Afin d'éviter la rupture de l'éprouvette dans la *MUTTOM*, l'effort maximal appliqué a été fixé à 80% de la contrainte maximale, soit 38 MPa. À ce niveau de contrainte, une rigidification de l'échantillon de 10% est attendue (Figure VI.36b). L'essai de traction *in situ* est décrit dans la Figure VI.37. Plusieurs scans microtomographiques ont été effectués : (1) avant le chargement, (2) pour une contrainte appliquée σ_2 égale à 38 MPa et (3) après être redescendu à une charge quasiment nulle (σ_3). La vitesse de déplacement de la traverse de la machine de traction *MUTTOM*, notée v_t sur la

Figure VI.37, a été fixée à la même valeur que celle utilisée dans le cadre des essais mécaniques sur la machine de traction *Instron 5982*, soit 0,5 mm/min.

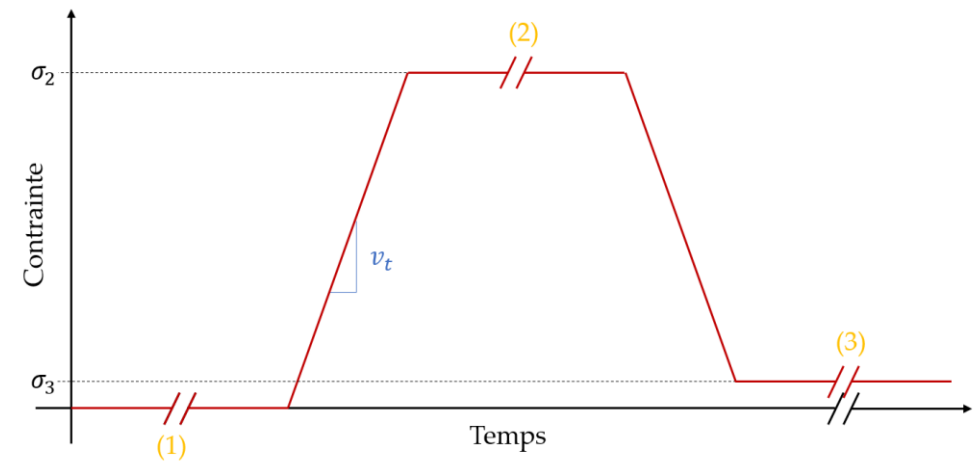


Figure VI.37 : Schématisation des différents niveaux de chargement et des temps d'acquisitions microtomographiques pour l'essai de traction *in-situ* sur une éprouvette de chanvre/Elium 0°/90° après 15 cycles de fatigue hydrique.

Pour analyser les mécanismes d'endommagement pendant l'essai de traction *in-situ*, les images microtomographiques, d'une résolution spatiale de 15 μm , ont été segmentées pour les trois niveaux de chargement décrits en Figure VI.37. Quatre phases ont été segmentées : l'extérieur de l'éprouvette (qui a été retiré), la matrice, les renforts et l'endommagement. Les Figures VI.38a, VI.38c et VI.38e permettent une visualisation globale de la distribution des endommagements dans un volume englobant toute la largeur et toute l'épaisseur de l'échantillon, soit environ 500 millions de voxels. Les Figures VI.38b, VI.38d et VI.38f sont des zooms sur des zones cubiques faisant 100 voxels de côté (1 million de voxels). L'axe \vec{x} représente la direction de traction. Le scan réalisé avant l'essai mécanique confirme la présence de pré-endommagements créés par la fatigue hydrique, localisés aux interfaces fils/matrice (Figures VI.38a et b). Lorsque l'échantillon est chargé, on observe que l'endommagement interfacial s'est développé et que des fissures surfaciques matricielles perpendiculaires à la direction de traction sont apparues (Figures VI.38c). Enfin, lorsque l'échantillon est déchargé (étape (3) sur la Figure VI.37), la quantité d'endommagement semble diminuer (Figures VI.38e et f) mais restent cependant plus importante qu'à l'état (1), avant chargement. Cela est dû au fait que les fissures matricielles et les décohésions fil/matrice se referment à cause du retour élastique du matériau composite. La résolution spatiale de l'acquisition microtomographique implique alors que certains endommagements ne sont plus visibles.

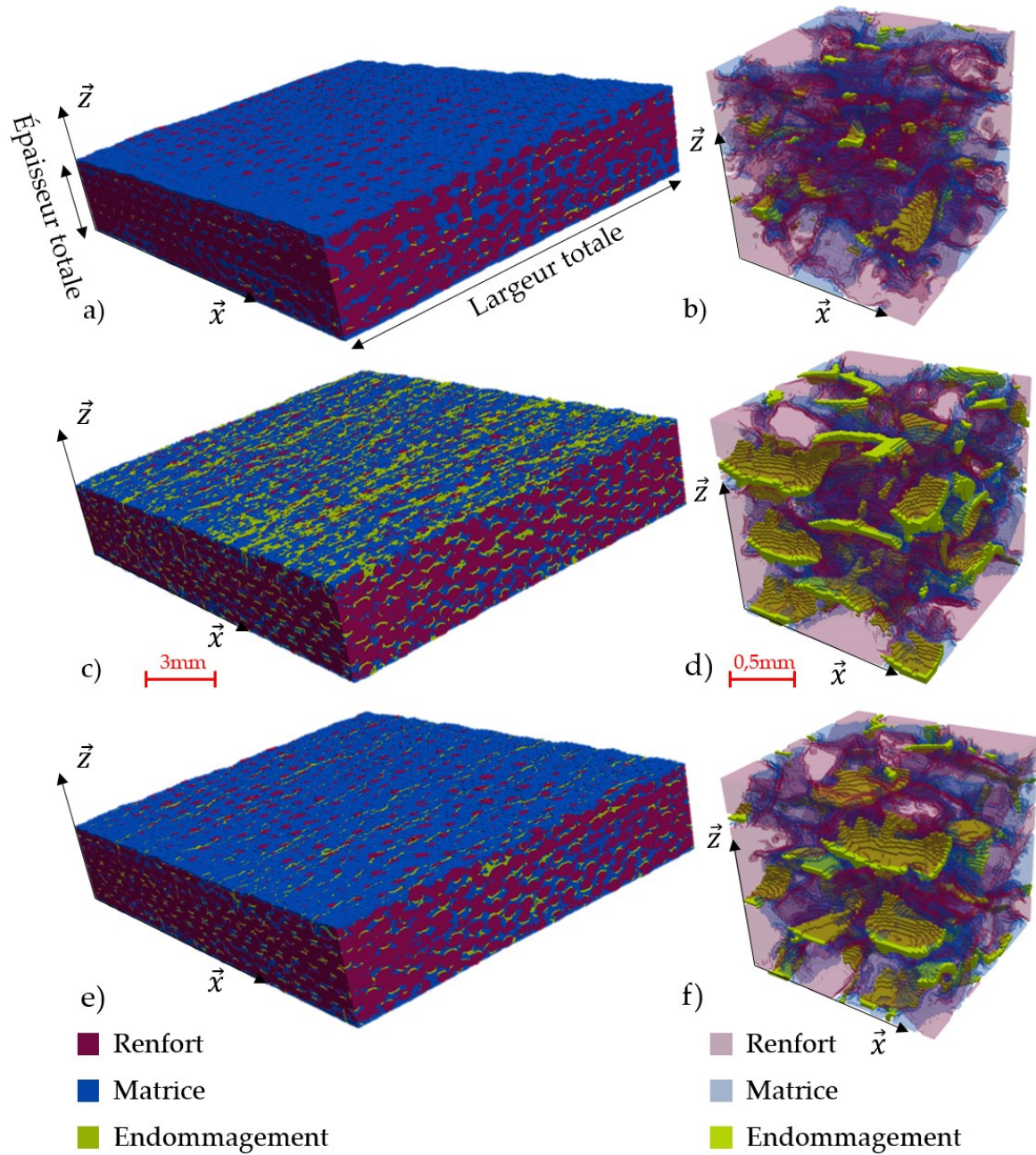


Figure VI.38 : Segmentations 3D pour une éprouvette chanvre/Elium 0°/90° après 15 cycles de fatigue hydrique a) et b) avant chargement, c) et d) chargée à 80% de σ_m et e) et f) déchargée.

De la même manière que dans la partie VI.2.3, le taux d'endommagement d_x^{15} (équation VI.1) a été calculé par la méthode « Sauvola » et en utilisant le code *Matlab*. Le Tableau VI.6 présente les valeurs du taux d'endommagement d_x^{15} , avec x correspondant aux états (1), (2) et (3) de la Figure VI.37. Les résultats sont bien cohérents avec ceux présentés pour des échantillons après 10 et 20 cycles de fatigue hydrique (Figure VI.23). On constate que seuls 60% des endommagements visibles sous charge sont encore visibles lorsque l'éprouvette est déchargée.

Tableau VI.6 : Taux d'endommagement d_x^{15} pour une éprouvette chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ après 15 cycles de fatigue hydrique avant chargement (1), chargée à 80% de σ_m (2) et déchargée (3).

	(1)	(2)	(3)
d_x^{15} (%)	0,10	4,21	2,54

La tranche centrale de l'éprouvette a été observée avant le chargement (Figure VI.39a) et sous charge (Figure VI.39b). Les zooms effectués exactement dans la même zone permettent de voir l'évolution lors de la traction des pré-endommagements créés par la fatigue hydrique. Après fatigue hydrique, les pré-endommagements sont localisés à l'interface fil/matrice, principalement au niveau des ondulations des fils de chaîne. Ces endommagements vont ensuite s'ouvrir et s'allonger sous charge, aboutissant à des fissures matricielles.

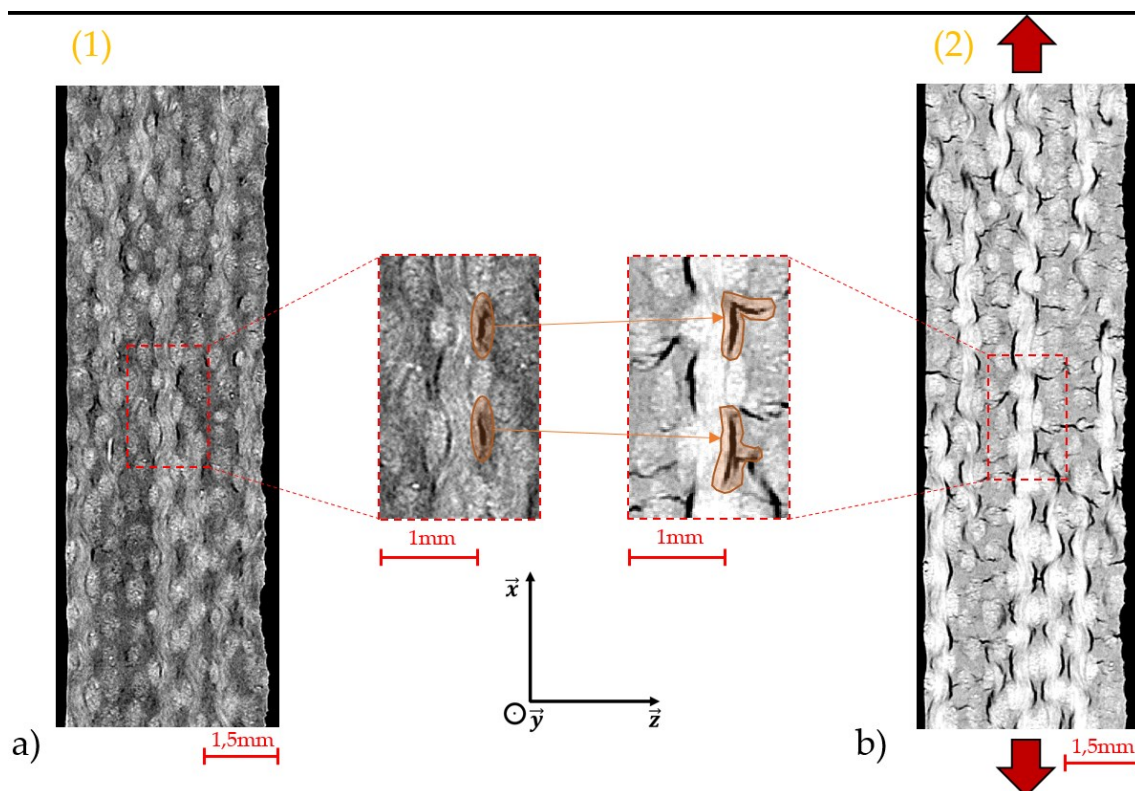


Figure VI.39 : Slice centrale et zoom dans l'éprouvette chanvre/Epilam $0^\circ/90^\circ$ vieillie par 15 cycles de fatigue hydrique a) avant le chargement et b) chargée à 80% de σ_m .

La Figure VI.39 montre également une forte ondulation des fils de chaîne. Une série de rayons de courbure a donc été mesurée pour les états (1) et (2). Il a été observé que le rayon de courbure était multiplié par deux entre l'état non chargé (1) et l'état sous charge (2), passant d'environ 0,5 mm à 1,0 mm. Ce redressement des fils de chaîne peut-il expliquer l'augmentation des modules sécants observée en Figure VI.36b ? Pour répondre à cette question, un modèle numérique simplifié d'un volume de composite tissé avec deux rayons de courbures différents a été réalisé.

VI.3.2.2 Modèle numérique

Le modèle numérique a pour but d'étudier le comportement en traction d'un morceau de composite chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ admettant deux rayons de courbure de fils de chaîne, notés R_1 pour l'état (1) et R_2 pour l'état (2). Ce modèle est un assemblage de fils de chaîne et de trame enchevêtrés (Figures VI.40a et VI.40b) et d'une matrice polymère (Figure VI.40c). Chaque fil est considéré homogène et cylindrique de diamètre constant. L'ondulation des fils de chaîne respecte les observations faites sur les microtomographies : R_1 est fixé à 0,5 mm et R_2 est égal à 1,0 mm. Les fils de trame, qui subissent un chargement purement transverse, sont considérés comme rectilignes. Toutes les interfaces sont supposées parfaites. Un comportement élastique isotrope est assigné à tous les matériaux. La géométrie du modèle permet l'obtention d'un taux volumique de fibres environ égal à 27%, quel que soit le rayon de courbure considéré. Ce taux volumique de fibres est plus faible que celui obtenu expérimentalement (Tableau II.4) du fait de la géométrie simplifiée. Le module d'Young de la matrice polymère est celui obtenu expérimentalement après 10 cycles de fatigue hydrique, soit 2,74 GPa (Tableau VI.3). Cela permet de s'approcher des conditions expérimentales de l'essai de traction *in-situ*, les propriétés élastiques de la matrice après 15 cycles de fatigue hydrique n'étant pas connues. Les valeurs des modules des fils de chaîne et de trame sont celles utilisées dans le modèle numérique développée par Perrier [121]. Environ 150000 éléments tétraédriques quadratiques du type C3D10 ont été utilisés. Enfin, les conditions aux limites sont schématisées sur la Figure VI.40d et comportent un déplacement nul dans les trois directions de l'espace à une extrémité du volume et un déplacement égal à 0,02 mm à l'autre extrémité, dans la direction \vec{x} .

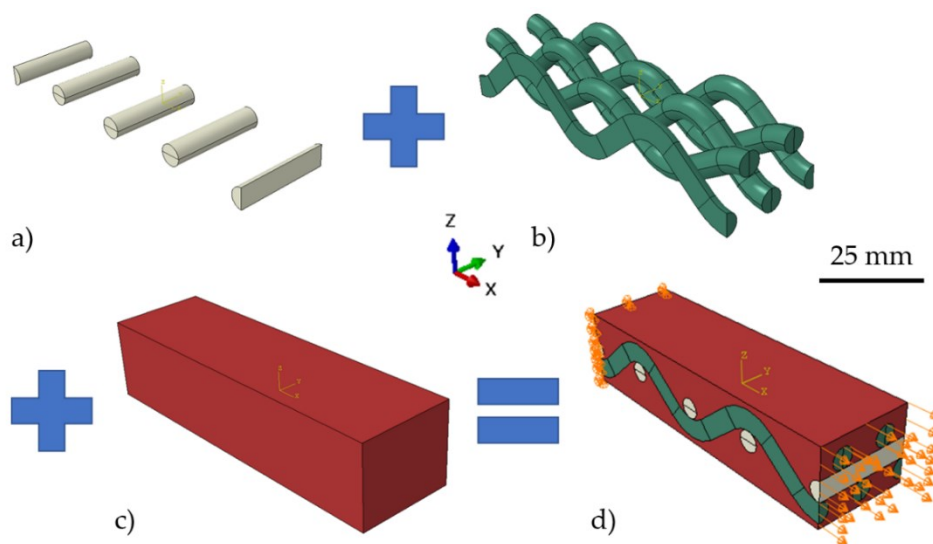


Figure VI.40 : Principe d'assemblage du modèle numérique : a) fils de trame, b) fils de chaîne ondulés, c) matrice polymère et d) morceau de composite chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ et conditions aux limites associées.

Les résultats du calcul *Abaqus* sont présentés sur la Figure VI.41 avec les cartographies des déformations transverses (ϵ_{YY}) dans une coupe longitudinale du morceau de composite chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ pour les rayons de courbure R_1 (Figure VI.41a) et R_2 (Figure VI.41b). On peut d'abord noter le rôle de concentrateur de déformation joué par les ondulations des fils de chaîne, sur les faces supérieure et inférieure du volume considéré (ellipses noires sur la Figure VI.41). Cela correspond effectivement aux emplacements préférentiels des décohésions fil/matrice observées par microtomographie (Figure VI.39). On observe également une répartition des déformations transverses plus homogène lorsque le rayon de courbure des fils de chaîne augmente.

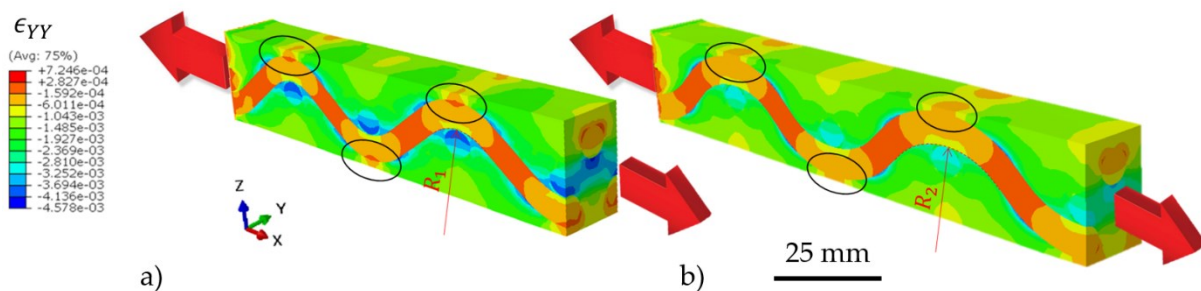


Figure VI.41 : Déformations transverses (ϵ_{YY}) dans un morceau de composite chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ calculées par éléments finis pour un rayon de courbure a) R_1 et b) R_2 .

Pour calculer le module d'Young de chacune de ces géométries, la contrainte appliquée équivalente et la déformation imposée ont été déterminées. La contrainte appliquée a été calculée comme étant la somme des forces de réactions RF sur la section soumise au déplacement imposé, divisée par l'aire correspondante. La déformation est donnée par le déplacement imposé. Les valeurs de module d'Young obtenues pour les deux géométries simulées sont données dans le Tableau VI.9.

Tableau VI.7 : Comparaison des valeurs de module d'Young calculées à partir du le modèle par éléments finis en fonction du rayon de courbure.

	Géométrie 1	Géométrie 2	Variation (%)
Rayon de courbure (mm)	0,5	1,0	100
Module d'Young (MPa)	5137	5577	+8,6

On constate que le doublement du rayon de courbure observé expérimentalement induit une augmentation d'environ 9% du module d'Young. Cette augmentation de module est très proche de celle observée expérimentalement sur la Figure VI.36b. Ces résultats permettent donc de confirmer que le redressement des fils de chaîne dans la direction de traction est responsable de l'augmentation du module sécant en fin d'essai dans les composites tissés. Ce phénomène ne pourra intervenir qu'au-delà d'un certain seuil de déformation longitudinale,

qui a été déterminé ici égal à 3%. Ainsi, tous les composites $0^\circ/90^\circ$ qui dépassent ce seuil, soit parce que leur matrice a été plastifiée par l'eau soit parce qu'ils ont été pré-endommagés par la fatigue hydrique, vont présenter cette rigidification en fin d'essai due au redressement des fils de chaîne.

VI.3.3 Scénario d'endommagement des composites soumis à de la fatigue hydrique

L'ensemble des résultats obtenus permet de proposer un scénario d'endommagement des composites tissés soumis à de la fatigue hydrique. Les Figures VI.42 et VI.43 présentent de manière schématique ces scénarios d'endommagement, valables pour les composites tissés à renfort de chanvre et de verre. Quelle que soit l'orientation du tissu, la fatigue hydrique induit la création d'endommagements à l'interface/fil matrice, notamment due à des différences de coefficients de dilatation thermique et de gonflement hygroscopique. Il est également possible que des microfissures apparaissent au sein de la matrice, qui elle-même peut subir des phénomènes irréversibles d'hydrolyse - pendant les phases d'immersion - ou d'oxydation - pendant les phases de séchage. Lorsque le composite est sollicité en traction, son module sécant va tout d'abord diminuer, du fait de la propagation de ces endommagements et de leur multiplication. Pour un composite $\pm 45^\circ$ (Figure VI.42), si sa déformation longitudinale devient supérieure à 8% environ, alors une augmentation de son module sécant apparait. L'évolution observée est la résultante de deux phénomènes : la rigidification de l'éprouvette due à la réorientation des fils de chaîne et de trame dans la direction de traction et la poursuite du développement des endommagements.

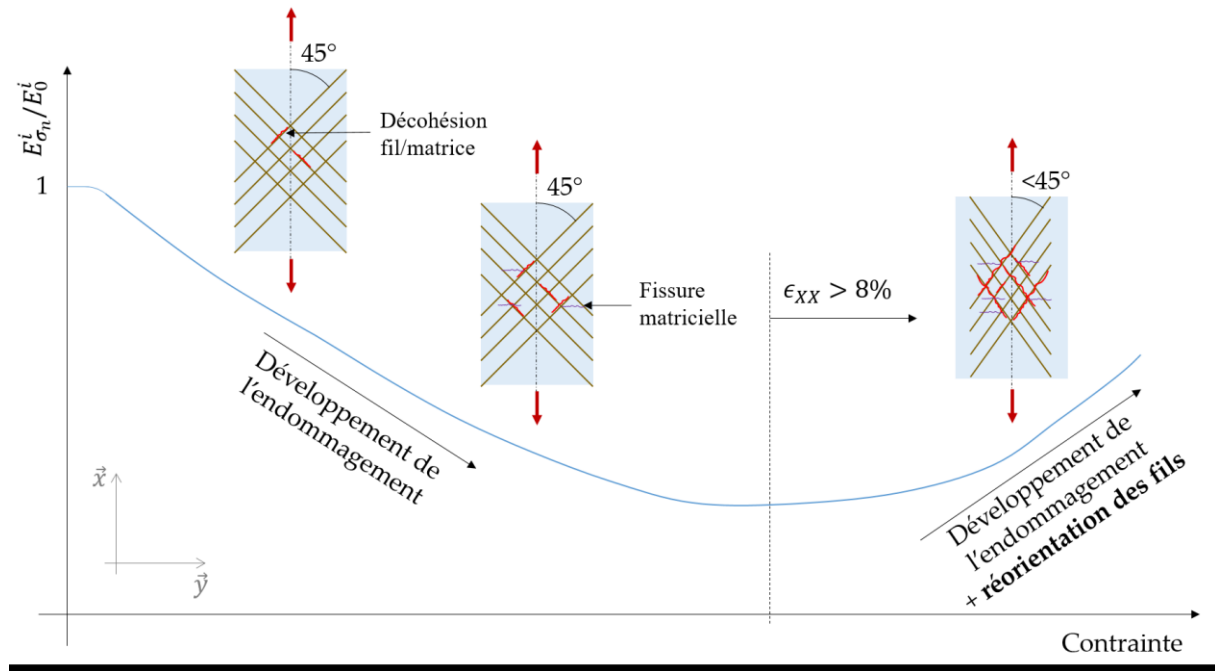


Figure VI.42 : Scénario d'endommagement des composites tissés $\pm 45^\circ$ lors d'un essai de traction après fatigue hydrique.

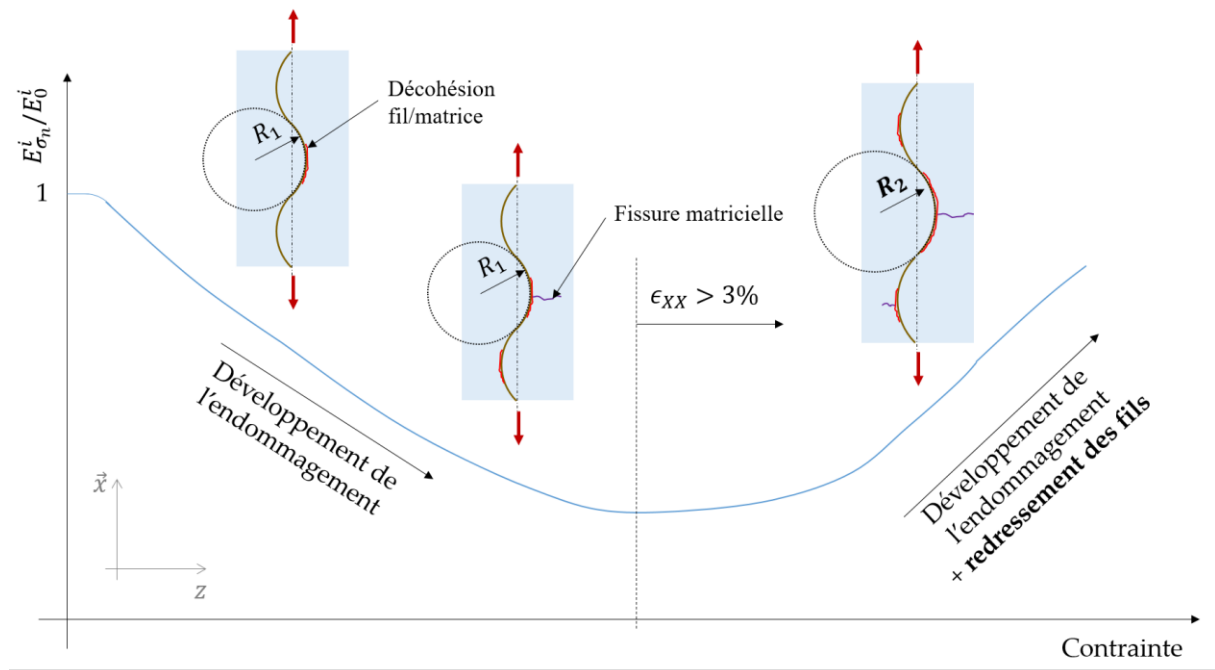


Figure VI.43 : Scénario d'endommagement des composites tissés $0^\circ/90^\circ$ lors d'un essai de traction après fatigue hydrique.

Dans le cas des composites $0^\circ/90^\circ$ (Figure VI.43), la contrainte appliquée va également entraîner un développement des pré-endommagements créés par la fatigue hydrique et provoquer une baisse du module sécant. Puis, quelle que soit la nature des renforts, au-delà

d'une déformation axiale de l'ordre de 3%, le phénomène de redressement des fils de chaîne dans la direction de traction entraîne une augmentation du module sécant. L'évolution du module sécant observée est donc le résultat d'une compétition entre le redressement des fils de chaîne et le développement des dégradations interfaciales et matricielles du composite.

Bilan sur l'influence multi-échelle de la fatigue hydrique sur l'endommagement des composites

Dans un premier temps, ce chapitre a montré l'influence des différents vieillissements hydriques appliqués aux constituants des composites (fil, matrice et interface). Des modifications significatives du comportement en traction ont été observées sur les fils de chanvre après saturation en eau et après 10 cycles de fatigue hydrique. En effet, la contrainte maximale atteinte par les fils de chanvre en traction est fortement diminuée après saturation en eau et fatigue hydrique. En termes de module élastique, les dispersions mesurées ne permettent pas d'obtenir de tendance après saturation en eau alors qu'après fatigue hydrique, les fils de chanvre voient leur rigidité réduite d'environ 40%. Finalement, la déformation à rupture des fils est environ divisée par deux, quel que soit le vieillissement hydrique appliqué. Les trois résines polymères ont également été testées en traction après saturation en eau et après 1 et 10 cycles de fatigue hydrique. Les résultats montrent en particulier une dégradation des propriétés mécaniques des résines polymères, qui peut être due à différents phénomènes durant les phases d'immersion dans l'eau et de séchage (plastification, hydrolyse et thermo-oxydation). Une analyse basée sur des acquisitions microtomographiques a également révélé une forte dégradation de l'interface fil/matrice au sein des éprouvettes monofilamentaires soumises à de la fatigue hydrique. La quantification des endommagements à l'interface a montré un fort développement des décohésions fil/matrice dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique.

La suite de ce chapitre était consacrée à l'étude de l'influence de la fatigue hydrique sur les mécanismes d'endommagement qui ont lieu au sein des composites à renfort de chanvre et de verre. La technique d'émission acoustique a été utilisée pendant les phases de séchage de la fatigue hydrique et pendant les sollicitations mécaniques après i cycles de fatigue hydrique. La mesure des émissions acoustiques pendant les phases de séchage de la fatigue hydrique a montré un comportement similaire entre les composites chanvre/Epilam et verre/Epilam. En effet, dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique, la part la plus importante de l'endommagement, en termes de nombre d'évènements et d'énergie acoustiques, a déjà été détectée. Pendant les essais de traction, pour les biocomposites, les évènements acoustiques sont nettement plus précoces après fatigue hydrique que dans les composites non vieillis. Les observations des faciès de rupture après fatigue hydrique ont montré la présence de décohésions aux interfaces fil/matrice et de quelques fissures matricielles. Une analyse quantitative des endommagements basée sur la segmentation des images microtomographiques a permis de montrer qu'après fatigue hydrique, ce sont les composites chanvre/Greenpoxy, quelle que soit l'orientation des renforts, qui ont le plus fort taux d'endommagement. En revanche, après sollicitation mécanique, ce sont les composites chanvre/Elum qui admettent les taux d'endommagement les plus élevés. Il a également été observé que les composites $\pm 45^\circ$ admettaient, après essai mécanique, un taux d'endommagement supérieur à celui des $0^\circ/90^\circ$.

Cela s'explique par le fait que l'interface fil/matrice est davantage sollicitée lorsque les renforts sont orientés à $\pm 45^\circ$. Les visualisations volumiques ont montré que le pré-endommagement créé lors de la fatigue hydrique, va créer, lors de la traction, en se propageant, un réseau constitué de décohésions fil/matrice reliées par des fissures matricielles.

Finalement, des scénarios d'endommagement ont pu être proposés. En s'appuyant sur la théorie des stratifiés, il a été possible de quantifier la part de rigidification des composites $\pm 45^\circ$ due à la réorientation des fils dans la direction de traction. D'autre part, un essai de traction *in-situ* sous microtomographe couplé à une modélisation par éléments finis a permis de montrer le rôle du redressement des fils de chaîne dans la rigidification des composites $0^\circ/90^\circ$. Ainsi, il a été montré qu'au-delà d'un certain seuil d'allongement des composites, ces mécanismes de rigidification entrent en compétition avec la baisse du module sécant due au développement de l'endommagement.



Conclusion & Perspectives

Dans un contexte de dérèglement climatique de plus en plus alarmant, il est primordial que les industriels adoptent une démarche d'écoconception alliant l'utilisation de matériaux plus respectueux de l'environnement et la limitation de leurs émissions de gaz à effet de serre, de la source à la fin de vie de leurs produits. Dans le cas des matériaux polymères renforcés, des leviers d'action existent : allègement des structures, utilisation de matrices polymères bio-sourcées et/ou recyclables, intégration de renforts issus du végétal, etc. Afin d'apporter des réponses à ces problématiques, différents matériaux composites à renfort tissé de chanvre ont été étudiés dans cette thèse dans des conditions de vieillissement hydrique simulant, de manière amplifiée, les variations naturelles d'humidité et de température. À des fins de comparaison, un composite traditionnel à base de résine époxy et de tissu de verre (verre/Epolam) a également été étudié. Trois composites à renfort de chanvre ont été sélectionnés : le chanvre/Epolam, avec la même matrice polymère pétro-sourcée non recyclable que les matériaux verre/Epolam, le chanvre/Greenpoxy, dont la matrice polymère est partiellement bio-sourcée mais non recyclable, et le chanvre/Elium, dont la matrice polymère thermoplastique développée par *Arkema* est pétro-sourcée, mais recyclable.

Ce travail de thèse s'est focalisé sur l'étude de l'effet de la fatigue hydrique sur le comportement en traction et les mécanismes d'endommagement des composites d'orientation $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$. L'analyse a également été réalisée à l'échelle des constituants des composites : la matrice seule, les fils et l'interface fil/matrice.

Dans un premier temps, tous les matériaux non vieillis ont été caractérisés mécaniquement. Les essais de traction sur les fils de chanvre ont révélé une grande dispersion des résultats, habituelle pour ces matériaux d'origine naturelle. La résine Epolam a montré une meilleure résistance en traction, mais les résines Elium et Greenpoxy ont toutefois des propriétés intéressantes, l'Elium ayant même une rigidité supérieure à celle de l'Epolam. Les essais mécaniques sur les composites tissés non vieillis ont confirmé la supériorité des composites verre/Epolam, tandis que les composites à matrice thermodure et à renfort de chanvre ont présenté des propriétés mécaniques supérieures à celles des composites chanvre/Elium. Les évolutions de module sécant ont montré un endommagement plus précoce des composites chanvre/Elium, résultats confirmés par la mesure des émissions acoustiques pendant l'essai de traction. Les acquisitions microtomographiques ont permis d'observer quelques endommagements, peu nombreux, et concentrés près de la zone de rupture des échantillons. Des essais de fragmentation ont également été effectués sur des éprouvettes monofilamentaires chanvre/Epolam et chanvre/Greenpoxy. La mesure des longueurs de décohésion autour de chaque fragmentation a montré un comportement à l'interface fil/matrice similaire pour les deux composites monofilamentaires, ce qui est en accord avec les résultats mécaniques obtenus sur les composites tissés. Afin d'analyser plus finement le

comportement de l'interface fil/matrice, un essai de fragmentation interrompu a été réalisé, associé à des acquisitions microtomographiques et une modélisation par éléments finis. Une éprouvette spécifique, avec de la poudre d' Al_2O_3 dans la résine Epolam, a été mise au point. Il a ainsi été possible de mesurer les champs de déformation volumiques par corrélation d'images numériques 3D (DVC). Les résultats ont montré une concentration des déformations autour de chaque fragmentation, avec une redistribution selon les directions de cisaillement à $\pm 45^\circ$.

Afin de déterminer les paramètres de fatigue hydrique à appliquer, une étude préliminaire a été effectuée en immergeant les composites dans l'eau à différentes températures. Les résultats ont montré que plusieurs mois sont nécessaires pour atteindre la saturation en eau à 20°C contre moins de deux semaines à 60°C ou 70°C . Pour l'ensemble des composites (verre/Epolam $0^\circ/90^\circ$ exclus), les essais de traction à chargements répétés progressifs ont mis en évidence un abaissement des propriétés mécaniques et une diminution des modules sécants plus précoce après saturation dans l'eau à 60°C ou 70°C . Après immersion dans l'eau chaude, les endommagements sont de même nature mais sont amplifiés. Finalement, les paramètres choisis pour les cycles de fatigue hydrique ont été les suivants : une immersion dans l'eau à 60°C pendant 12 jours suivie d'un séchage à 40°C pendant 2 jours en étuve.

Environ 150 éprouvettes de composites ont ensuite été soumises au vieillissement par fatigue hydrique. Jusqu'à 30 cycles ont été appliqués, représentant un vieillissement cumulé d'environ 420 jours. Les suivis gravimétriques ont montré que les composites étudiés suivent une loi de Fick lors des phases d'absorption tout au long de la fatigue hydrique. Pour les composites à renfort de chanvre, il a été montré que la cinétique d'absorption est fortement accélérée durant les premiers cycles de fatigue hydrique. Ensuite, deux types d'évolution du coefficient de diffusion de Fick ont été observés selon la nature de la matrice : les composites chanvre/Elium voient leur coefficient de diffusion augmenter de manière continue avec le nombre de cycles de fatigue hydrique alors que, pour les autres composites, il se stabilise après quelques cycles. La fatigue hydrique a également un impact significatif sur la température de transition vitreuse des matrices des composites qui varie de +7% à -14% après 10 cycles. Une analyse dimensionnelle a également mis en évidence une corrélation entre augmentation de l'épaisseur et augmentation du coefficient de diffusion pour les composites à renfort de chanvre. Les matériaux composites ont ensuite été caractérisés mécaniquement par des essais de traction à chargements répétés progressifs. Les résultats ont montré une chute des valeurs du module d'Young et de la contrainte maximale pour tous les matériaux dès les premiers cycles de fatigue hydrique. Pour les biocomposites, ce sont les échantillons de chanvre/Greenpoxy qui présentent les variations de propriétés en traction les plus faibles. Ces essais ont également montré que la contrainte à rupture des composites verre/Epolam diminue continuellement lorsque le nombre de cycles de fatigue hydrique augmente, alors que les biocomposites voient leur résistance à la traction se stabiliser dès le 5^{ème} cycle. Par ailleurs, des essais de fatigue thermique ont permis de vérifier que ces variations de propriétés sont bien liées à la présence d'eau pendant la fatigue hydrique, et non pas seulement aux variations de

température. L'évolution des modules sécants a également été mesurée pendant les essais de traction pour tous les matériaux après fatigue hydrique. Une décroissance précipitée des modules sécants a été observée par rapport aux composites non vieillis, suivie, pour certains matériaux, d'une augmentation en fin d'essai. Après 30 cycles de fatigue hydrique, on retiendra notamment que les modules sécants en fin d'essai des composites chanvre/Greenpoxy $\pm 45^\circ$ et verre/Epilam $\pm 45^\circ$ sont du même ordre de grandeur.

Le dernier chapitre s'est focalisé sur l'étude des mécanismes d'endommagement à l'échelle des constituants et des composites tissés. Les résultats montrent des variations significatives des propriétés en traction des résines polymères et des fils de chanvre après fatigue hydrique, mais qui ne sont pas transposables à l'échelle du composite. Des acquisitions microtomographiques sur des composites monofilamentaires ont mis en évidence que l'interface fil/matrice se dégrade fortement dès le 1^{er} cycle de fatigue hydrique. Ce résultat a été confirmé à l'échelle des composites tissés par l'observation des faciès de rupture. Le suivi par émission acoustique sur les composites tissés a également montré une plus grande précocité de l'apparition des endommagements de haute énergie lors des essais de traction après fatigue hydrique, ce qui est cohérent avec les évolutions observées des modules sécants. À partir des acquisitions microtomographiques réalisées sur les biocomposites pour différents nombres de cycles de fatigue hydrique, avant et après sollicitation mécanique, il a été possible d'évaluer les parts d'endommagement qui ont lieu pendant la fatigue hydrique et pendant les essais mécaniques. Les résultats montrent que, si les taux d'endommagement dans les composites d'orientation $\pm 45^\circ$ et $0^\circ/90^\circ$ sont similaires après fatigue hydrique, ils sont supérieurs dans les $\pm 45^\circ$ après rupture en traction. Cela s'explique par le fait que les interfaces fil/matrice sont davantage sollicitées dans les $\pm 45^\circ$ que dans les $0^\circ/90^\circ$. D'autre part, les composites chanvre/Greenpoxy ont montré une meilleure capacité, lors de la traction, à résister à la propagation des pré-endommagements créés lors de la fatigue hydrique par comparaison avec les chanvre/Epilam et les chanvre/Elium. Une étude a ensuite été menée pour expliquer les augmentations de module sécant observées en fin d'essai dans certains composites après vieillissement hydrique. Pour les composites à $\pm 45^\circ$, un calcul basé sur la théorie des stratifiés a permis de justifier la rigidification par la réorientation des fils de chaîne et de trame dans la direction de traction. Ce phénomène, observé pour un niveau de déformation longitudinale supérieur à 8%, concerne particulièrement les composites verre/Epilam $\pm 45^\circ$ et chanvre/Elium $\pm 45^\circ$ saturés en eau et vieillis par fatigue hydrique. Concernant la rigidification des composites $0^\circ/90^\circ$, un essai de traction *in-situ* au sein du microtomographe sur une éprouvette chanvre/Elium $0^\circ/90^\circ$ vieillie par 15 cycles de fatigue hydrique a permis d'observer un redressement des fils de chaîne. Ce redressement des fils de chaîne, également simulé par éléments finis, entraîne une rigidification du même ordre de grandeur que celle observée sur les courbes d'évolution du module sécant, à partir d'un seuil d'environ 3% de la déformation longitudinale. Finalement, l'évolution de la rigidité des composites lors de la traction après fatigue hydrique est donc le résultat d'une compétition

entre le développement des décohésions interfaciales et des fissures matricielles et la réorientation ou le redressement des fils du tissu.

Ces travaux de thèse permettent de mieux comprendre l'influence de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique et les mécanismes d'endommagement des composites tissés à renfort de chanvre. Les résultats ont montré que, pour une même matrice, les composites à renfort de verre ne sont pas, contrairement à ce qu'on pourrait croire, moins impactés par la fatigue hydrique que les biocomposites. Ce travail a également permis d'effectuer une comparaison directe entre trois matrices polymères différentes, plus ou moins respectueuses de l'environnement.

Des travaux complémentaires pourraient être envisagés pour approfondir ces résultats. Par exemple, il serait intéressant de réaliser un plus grand nombre de cycles de fatigue hydrique afin de pouvoir déterminer s'il existe, d'une part, un nombre de cycles à partir duquel le coefficient de diffusion de l'eau dans les composites chanvre/Elium reste stable, et d'autre part, un nombre de cycles à partir duquel la contrainte à rupture des composites verre/Epilam se stabilise. On pourrait également envisager d'effectuer le suivi de l'endommagement par émission acoustique tout au long de la vie d'une éprouvette, de sa fabrication à sa rupture, ce qui constituerait un apport de données supplémentaires intéressant. Pour cela, il faudrait pouvoir intégrer des capteurs piézo-électriques suffisamment petits au sein des échantillons pour ne pas modifier le comportement mécanique du matériau étudié. Une autre étude intéressante serait de coupler sollicitation mécanique et vieillissement par fatigue hydrique. Un maintien en charge, par exemple, pourrait permettre d'évaluer l'influence de ce chargement sur la cinétique d'absorption et de désorption des composites lors de la fatigue hydrique. Quid de l'effet de la fatigue hydrique sur la fatigue mécanique ? ou du couplage des deux ? De nombreuses questions restent à explorer. L'intégration de marqueurs au sein de la matrice polymère dans un composite tissé pourrait aussi permettre d'analyser les champs de déformation via la mesure par corrélation d'images numériques 3D (DVC) développée dans le cadre de ces travaux de thèse. Aujourd'hui, nous sommes limités par la résolution spatiale obtenue dans le microtomographe du laboratoire. L'utilisation d'un synchrotron, type *Soleil*, pourrait lever cette limitation. En termes de simulation numérique, il serait également envisageable de générer, à partir des volumes microtomographiques reconstruits, des jumeaux numériques des composites étudiés, prenant en compte la disposition réelle des fils de chanvre et la présence de pré-endommagements dus à la fatigue hydrique. Cela pourrait être réalisé en utilisant les outils développés au laboratoire : le logiciel de génération de maillage *S2M*, qui crée un maillage à partir d'un volume segmenté, et le code de calcul *FoXtroT*, qui simule la réponse mécanique de la géométrie maillée. Cela permettrait une meilleure compréhension des liens qui existent, après fatigue hydrique, entre le

comportement mécanique des constituants, de l'interface fil/matrice et du composite, facilitant ainsi le changement d'échelle.

D'un point de vue industriel, les résultats de ces travaux de thèse, obtenus pour des composites à renfort de chanvre, restent *a priori* valables dans le cas de composites à renfort naturel tel que le lin, très semblable au chanvre. Les résultats obtenus montrent que, pour concevoir une pièce industrielle en biocomposite, il est inutile de la caractériser après un long vieillissement par fatigue hydrique puisque l'essentiel de la dégradation des propriétés mécaniques a lieu après un seul cycle de fatigue hydrique. Cela permet donc une prédiction rapide – et moins coûteuse – des performances des biocomposites sur le long terme, contrairement aux composites à renfort de verre, dont les propriétés mécaniques se dégradent continuellement avec l'avancée du vieillissement par fatigue hydrique, qui nécessitent donc une étude sur du long terme. Ainsi, même si les performances initiales des biocomposites restent inférieures à celles des composites à renfort de verre, il peut donc être pertinent, pour certaines applications, de préférer ces éco-matériaux pour leur plus grande stabilité au cours de la fatigue hydrique. D'autre part, on pourrait également envisager d'autres moyens de mise en œuvre de ces composites, afin de s'adapter aux technologies présentes dans l'industrie, telles que le placement de fibres automatisé (*Automated Fiber Placement*), l'enroulement filamentaire, voire l'impression 3D avec des fibres continues. Finalement, après avoir étudié des composites sous forme d'éprouvettes, il serait maintenant intéressant de travailler à l'échelle d'une structure, une pale d'éolienne ou d'hydrolienne par exemple, en couplant simulation numérique et caractérisation expérimentale multi-instrumentée sous différents conditionnements de vieillissement hydrique, cyclique ou non. Ainsi, cela ouvre des perspectives au niveau industriel pour le développement des biocomposites dans un contexte de transition écologique devenue essentielle.

Valorisation des résultats obtenus au cours de la thèse

Listes des publications

- Drouhet, Q., Touchard, F., & Chocinski-Arnault, L. (2022). Influence of Hygrothermal Aging on Mechanical Properties and Damage Mechanisms of Hemp-Reinforced Biocomposites. *Journal of Natural Fibers*, 19(17), 15404-15421. <https://doi.org/10.1080/15440478.2022.2126424>
- Drouhet, Q., Touchard, F., & Chocinski-Arnault, L. (2023). Tensile Behavior of [0/90]₇ Hemp/Elium Biocomposites after Water Aging : In-Situ Micro-CT Testing and Numerical Analysis. *Micro*, 3, 496-509. <https://doi.org/10.3390/micro3020033>
- Drouhet, Q., Touchard, F., Chocinski-Arnault, L., & Mellier, D. (2023). 3D strain fields in a plant fibre composite during fragmentation test : Micro-CT based DIC and DVC. *Composites Part B: Engineering*, 263, 110860. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2023.110860>
- Drouhet Q., Touchard F., Chocinski-Arnault L. (soumis le 24/07/2023). Influence of hydrothermal fatigue on mechanical properties and damage mechanisms of hemp-reinforced biocomposites and comparison with glass-reinforced composites.
- Drouhet Q., Barbière R., Touchard F., Chocinski-Arnault L., (soumis le 12/09/2023). Natural growth of CaCO₃ crystals on hemp yarns: morphology analysis and mechanical effects on composites.

Liste des conférences

- Drouhet Q., Touchard F., Chocinski-Arnault L. (28-30 juin 2021). Influence de la température de vieillissement hydrique sur le comportement d'éco-composites avec différentes matrices polymères. 22^{ème} Journées Nationales sur les Composites (JNC), édition en ligne, oral.
- Drouhet Q., Touchard F., Chocinski-Arnault L. (26-30 juin 2022). Influence of wet/dry cycling on mechanical properties of hemp-reinforced biocomposites. 20th European Conference on Composite Materials (ECCM), Lausanne, Suisse, oral.
- Drouhet Q., Touchard F., Chocinski-Arnault L. (19-21 octobre 2022). Influence de la fatigue hydrique les propriétés mécaniques de composites à renfort de chanvre. 5^{ème} Journées Jeunes Chercheurs - Éco-composites et Composites Bio-sourcés. Île de Groix, France, oral.
- Drouhet Q., Touchard F., Chocinski-Arnault L. (19-21 juin 2023). DIC and DVC with X-ray computed tomography for the measurement of strains at the yarn/matrix interface in single hemp yarn composites. 6th International Conference on Natural Fibers (ICNF). Funchal, Madère, Portugal, oral.
- Drouhet Q., Touchard F., Chocinski-Arnault L., Mellier D. (3-5 juillet 2023). Effet de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique d'éco-composites [0/90]₇ à renfort de chanvre : analyse expérimentale et modélisation. 23^{ème} Journées Nationales sur les Composites (JNC), Besançon, France, oral.
- Drouhet Q., Touchard F., Chocinski-Arnault L. (30 juillet - 4 août 2023). Influence of wet/dry ageing on mechanical properties and damage mechanisms of hemp-reinforced eco-composites. 23rd International Conference on Composite Materials (ICCM), Belfast, Irlande du Nord, Royaume-Uni, oral.

Références

- [1] E. Kavadze *et al.*, « 30,000-Year-Old Wild Flax Fibers », *Science*, vol. 325, n° 5946, p. 1359-1359, sept. 2009, doi: 10.1126/science.1175404.
- [2] F. Dunand et R. Lichtenberg, *Les momies et la mort en Égypte*, Paris. Errance, 1998.
- [3] Centre International de la Mer, « La Corderie Royale de Rochefort ». Consulté le: 20 septembre 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.corderie-royale.com/2019/06/05/le-chanvre-origine-et-utilisation/>
- [4] Alliance for European Flax-Linen & Hemp, « Le chanvre dans l’histoire ». Consulté le: 20 septembre 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://allianceflaxlinenhemp.eu/fr/tout-savoir-chanvre-europeen/chanvre-dans-histoire>
- [5] J. Dufour, « Une culture moribonde : le chanvre français », *ingeo*, vol. 25, n° 4, p. 139-154, 1961, doi: 10.3406/ingeo.1961.2085.
- [6] Collectif, *La filature de Ligugé – L’usine et ses acteurs 1856-1976*, Amicale Filature et Tissage Industriel de Ligugé. [En ligne]. Disponible sur: https://www.nouvelle-aquitaine.developpement-durable.gouv.fr/IMG/pdf/DOC_FILATURE_LIGUGE.pdf
- [7] InterChanvre, « Le chanvre - Une culture “verte” incroyable », 2020. [En ligne]. Disponible sur: https://www.interchanvre.org/documents/1.Interchanvre/202005_PPT_Le%20Chanvre.pdf
- [8] D. E. Witten et V. Mathes, « The Market for Glass Fibre Reinforced Plastics (GRP) in 2019 », eucia.eu. Consulté le: 18 juin 2021. [En ligne]. Disponible sur: https://eucia.eu/userfiles/files/20191125_avk_market_report_e_2019_final_3.pdf
- [9] A. Mukherji *et al.*, « SYNTHESIS REPORT OF THE IPCC SIXTH ASSESSMENT REPORT (AR6) », 2023.
- [10] C. Bonnafous, « Analyse multi échelle des mécanismes d’endommagement de composites chanvre/époxy à renforts tissés. Caractérisation de l’interface fibre/matrice. », Thèse de doctorat, ENSMA, Poitiers, 2010.
- [11] D. S. de Vasconcellos, « Comportement en fatigue avant et après impact de composites tissés chanvre/époxy », Thèse de doctorat, ENSMA, Poitiers, 2013.
- [12] A. Perrier, « Influence du vieillissement hydrique sur le comportement mécanique de l’interface fil/matrice dans des composites chanvre/époxy. », Thèse de doctorat, ENSMA, Poitiers, 2016.
- [13] R. Barbière, « Comportement en fatigue et optimisation de l’interface d’un composite tissé chanvre/époxy : effet de l’humidité. », Thèse de doctorat, ENSMA, Poitiers, 2020.
- [14] JEC Group, « JEC Observer: Overview of the Global Composites Market, 2021-2026 », JEC Group, Press Kit, mars 2022.
- [15] Lucintel et Estin, « Evolution of the composite market by fibre type. », *JEC Composites Magazine*, n° Special issue #1, 39, 2019.
- [16] T. Sathishkumar, S. Satheeshkumar, et J. Naveen, « Glass fiber-reinforced polymer composites – a review », *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 33, n° 13, p. 1258-1275, juill. 2014, doi: 10.1177/0731684414530790.
- [17] P. Wambua, J. Ivens, et I. Verpoest, « Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics? », *Composites Science and Technology*, vol. 63, n° 9, p. 1259-1264, juill. 2003, doi: 10.1016/S0266-3538(03)00096-4.
- [18] M. P. M. Dicker, P. F. Duckworth, A. B. Baker, G. Francois, M. K. Hazzard, et P. M. Weaver, « Green composites: A review of material attributes and complementary applications », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 56, p. 280-289, janv. 2014, doi: 10.1016/j.compositesa.2013.10.014.
- [19] J. Gassan, A. Chate, et A. K. Bledzki, « Calculation of elastic properties of natural fibers », *Journal of Materials Science*, vol. 36, n° 15, p. 3715-3720, 2001, doi: 10.1023/a:101796915925.
- [20] « FAOSTAT, Cultures et produits animaux ». Consulté le: 28 avril 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.fao.org/faostat/fr/#data/QCL/visualize>
- [21] A. Bourmaud, J. Beaugrand, D. U. Shah, V. Placet, et C. Baley, « Towards the design of high-performance plant fibre composites », *Progress in Materials Science*, vol. 97, p. 347-408, août 2018, doi: 10.1016/j.pmatsci.2018.05.005.
- [22] S. Ovali et E. Sancak, « Investigation of Mechanical Properties of Jute Fiber Reinforced Low Density Polyethylene Composites », *Journal of Natural Fibers*, vol. 19, n° 8, p. 3109-3126, août 2022, doi: 10.1080/15440478.2020.1838999.
- [23] A. Chilali, W. Zouari, M. Assarar, H. Kebir, et R. Ayad, « Analysis of the mechanical behaviour of flax and glass fabrics-reinforced thermoplastic and thermoset resins », *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 35, n° 16, p. 1217-1232, août 2016, doi: 10.1177/0731684416645203.

- [24] S. Goutianos, T. Peijs, B. Nystrom, et M. Skrifvars, « Development of Flax Fibre based Textile Reinforcements for Composite Applications », *Appl Compos Mater*, vol. 13, n° 4, p. 199-215, juill. 2006, doi: 10.1007/s10443-006-9010-2.
- [25] Q. Liu et M. Hughes, « The fracture behaviour and toughness of woven flax fibre reinforced epoxy composites », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 39, n° 10, p. 1644-1652, oct. 2008, doi: 10.1016/j.compositesa.2008.07.008.
- [26] L. Pil, F. Bensadoun, J. Pariset, et I. Verpoest, « Why are designers fascinated by flax and hemp fibre composites? », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 83, p. 193-205, avr. 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2015.11.004.
- [27] J.-K. Kim et Y.-W. Mai, *Engineered Interfaces in Fiber Reinforced Composites*, Elsevier Science Ltd. 1998.
- [28] Y. Zhou, M. Fan, et L. Chen, « Interface and bonding mechanisms of plant fibre composites: An overview », *Composites Part B: Engineering*, vol. 101, p. 31-45, sept. 2016, doi: 10.1016/j.compositesb.2016.06.055.
- [29] A. Perrier, F. Touchard, L. Chocinski-Arnault, et D. Mellier, « Quantitative analysis by micro-CT of damage during tensile test in a woven hemp/epoxy composite after water ageing », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 102, p. 18-27, nov. 2017, doi: 10.1016/j.compositesa.2017.07.018.
- [30] S. Huang, Q. Fu, L. Yan, et B. Kasal, « Characterization of interfacial properties between fibre and polymer matrix in composite materials – A critical review », *Journal of Materials Research and Technology*, vol. 13, p. 1441-1484, juill. 2021, doi: 10.1016/j.jmrt.2021.05.076.
- [31] L. S. Penn et E. R. Bowler, « A new approach to surface energy characterization for adhesive performance prediction », *Surf. Interface Anal.*, vol. 3, n° 4, p. 161-164, août 1981, doi: 10.1002/sia.740030405.
- [32] G. P. Tandon et N. J. Pagano, « Micromechanical analysis of the fiber push-out and re-push test », *Composites Science and Technology*, vol. 58, n° 11, p. 1709-1725, nov. 1998, doi: 10.1016/S0266-3538(98)00037-2.
- [33] A. Kelly et W. R. Tyson, « Tensile Properties of Fibre-Reinforced Metals: Copper/Tungsten and Copper/Molibdène », *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 13, n° 06, p. 329-338, 1965, doi: [https://doi.org/10.1016/0022-5096\(65\)90035-9](https://doi.org/10.1016/0022-5096(65)90035-9).
- [34] T. Ohsawa, A. Nakayama, M. Miwa, et A. Hasegawa, « Temperature dependence of critical fiber length for glass fiber-reinforced thermosetting resins », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 22, n° 11, p. 3203-3212, nov. 1978, doi: 10.1002/app.1978.070221115.
- [35] W. Weibull, « A Statistical Distribution Function of Wide Applicability », *Journal of Applied Mechanics*, vol. 18, n° 3, p. 293-297, sept. 1951, doi: 10.1115/1.4010337.
- [36] N. E. Zafeiropoulos, « On the use of single fibre composites testing to characterise the interface in natural fibre composites », *Composite Interfaces*, vol. 14, n° 7-9, p. 807-820, janv. 2007, doi: 10.1163/156855407782106438.
- [37] X. Li, L. G. Tabil, et S. Panigrahi, « Chemical Treatments of Natural Fiber for Use in Natural Fiber-Reinforced Composites: A Review », *J Polym Environ*, vol. 15, n° 1, p. 25-33, févr. 2007, doi: 10.1007/s10924-006-0042-3.
- [38] R. Barbière, F. Touchard, L. Chocinski-Arnault, E. Fourré, E. Leroy, et J. Barrault, « Characterisation of interfacial adhesion in hemp composites after H₂O₂ and non-thermal plasma treatments », *Journal of Composite Materials*, vol. 55, n° 25, p. 3751-3762, oct. 2021, doi: 10.1177/00219983211015427.
- [39] H. Mohit et V. Arul Mozhi Selvan, « A comprehensive review on surface modification, structure interface and bonding mechanism of plant cellulose fiber reinforced polymer based composites », *Composite Interfaces*, vol. 25, n° 5-7, p. 629-667, juill. 2018, doi: 10.1080/09276440.2018.1444832.
- [40] M. Ramesh, « Flax (*Linum usitatissimum* L.) fibre reinforced polymer composite materials: A review on preparation, properties and prospects », *Progress in Materials Science*, vol. 102, p. 109-166, mai 2019, doi: 10.1016/j.pmatsci.2018.12.004.
- [41] M. C. Seghini *et al.*, « Engineering the interfacial adhesion in basalt/epoxy composites by plasma polymerization », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 122, p. 67-76, juill. 2019, doi: 10.1016/j.compositesa.2019.04.013.
- [42] E. Verhulp, B. van Rietbergen, et R. Huijckes, « A three-dimensional digital image correlation technique for strain measurements in microstructures », *Journal of Biomechanics*, vol. 37, n° 9, p. 1313-1320, sept. 2004, doi: 10.1016/j.jbiomech.2003.12.036.
- [43] A. I. Hussein, P. E. Barbone, et E. F. Morgan, « Digital Volume Correlation for Study of the Mechanics of Whole Bones », *Procedia IUTAM*, vol. 4, p. 116-125, 2012, doi: 10.1016/j.piutam.2012.05.013.
- [44] M. Palanca *et al.*, « Digital volume correlation can be used to estimate local strains in natural and augmented vertebrae: An organ-level study », *Journal of Biomechanics*, vol. 49, n° 16, p. 3882-3890, déc. 2016, doi: 10.1016/j.jbiomech.2016.10.018.

- [45] J. Adam, M. Klinkmüller, G. Schreurs, et B. Wieneke, « Quantitative 3D strain analysis in analogue experiments simulating tectonic deformation: Integration of X-ray computed tomography and digital volume correlation techniques », *Journal of Structural Geology*, vol. 55, p. 127-149, oct. 2013, doi: 10.1016/j.jsg.2013.07.011.
- [46] C. Ovalle, J. Brun, L. Helfen, M. Hurst, X. Kong, S. Joannès, T. F. Morgeneyer, « Effects of local mesostructure on the damage mechanisms in a fibre-reinforced polyamide composite studied by in situ laminography and digital volume correlation », présenté à 1st Virtual ESIS TC4 Conference on Fracture of Polymers, Composites and Adhesives, Les Diablerets, Suisse, septembre 2021.
- [47] M. Mehdikhani, C. Breite, Y. Swolfs, M. Wevers, S. V. Lomov, et L. Gorbatikh, « Combining digital image correlation with X-ray computed tomography for characterization of fiber orientation in unidirectional composites », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 142, p. 106234, mars 2021, doi: 10.1016/j.compositesa.2020.106234.
- [48] M. Mehdikhani *et al.*, « Digital volume correlation for meso/micro in-situ damage analysis in carbon fiber reinforced composites », *Composites Science and Technology*, vol. 213, p. 108944, sept. 2021, doi: 10.1016/j.compscitech.2021.108944.
- [49] J. Holmes, S. Sommacal, Z. Stachurski, R. Das, et P. Compston, « Digital image and volume correlation with X-ray micro-computed tomography for deformation and damage characterisation of woven fibre-reinforced composites », *Composite Structures*, vol. 279, p. 114775, janv. 2022, doi: 10.1016/j.compstruct.2021.114775.
- [50] C. S. Timpano et G. W. Melenka, « Artificial seeding for micro-computed tomography image contrast enhancement for digital volume correlation », *Composites Part B: Engineering*, vol. 215, p. 108809, juin 2021, doi: 10.1016/j.compositesb.2021.108809.
- [51] E. Schöberl *et al.*, « Fibre-direction strain measurement in a composite ply under quasi-static tensile loading using Digital Volume Correlation and in situ Synchrotron Radiation Computed Tomography », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 137, p. 105935, oct. 2020, doi: 10.1016/j.compositesa.2020.105935.
- [52] B. Madsen, P. Hoffmeyer, A. B. Thomsen, et H. Lilholt, « Hemp yarn reinforced composites – I. Yarn characteristics », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 38, n° 10, p. 2194-2203, oct. 2007, doi: 10.1016/j.compositesa.2007.06.001.
- [53] C.-H. Shen et G. S. Springer, « Moisture Absorption and Desorption of Composite Materials », *Journal of Composite Materials*, vol. 10, n° 1, p. 2-20, janv. 1976, doi: 10.1177/002199837601000101.
- [54] A. Shahzad, « Effects of water absorption on mechanical properties of hemp fiber composites », *Polym Compos*, vol. 33, n° 1, p. 120-128, janv. 2012, doi: 10.1002/pc.21254.
- [55] D. Scida, M. Assarar, C. Poilâne, et R. Ayad, « Influence of hygrothermal ageing on the damage mechanisms of flax-fibre reinforced epoxy composite », *Composites Part B: Engineering*, vol. 48, p. 51-58, mai 2013, doi: 10.1016/j.compositesb.2012.12.010.
- [56] M. Berges *et al.*, « 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, p. 165-177, sept. 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2016.05.029.
- [57] T. Jeannin *et al.*, « Influence of hydrothermal ageing on the fatigue behaviour of a unidirectional flax-epoxy laminate », *Composites Part B: Engineering*, vol. 174, p. 107056, oct. 2019, doi: 10.1016/j.compositesb.2019.107056.
- [58] A. Q. Dayo *et al.*, « Effects of accelerated weathering on the mechanical properties of hemp fibre/polybenzoxazine based green composites », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 128, p. 105653, janv. 2020, doi: 10.1016/j.compositesa.2019.105653.
- [59] J. El Yagoubi, G. Lubineau, S. Saghir, J. Verdu, et A. Askari, « Thermomechanical and hygroelastic properties of an epoxy system under humid and cold-warm cycling conditions », *Polymer Degradation and Stability*, vol. 99, p. 146-155, janv. 2014, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2013.11.011.
- [60] G. Pitarresi, M. Scafidi, S. Alessi, M. Di Filippo, C. Billaud, et G. Spadaro, « Absorption kinetics and swelling stresses in hydrothermally aged epoxies investigated by photoelastic image analysis », *Polymer Degradation and Stability*, vol. 111, p. 55-63, janv. 2015, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2014.10.019.
- [61] Z. N. Azwa, B. F. Yousif, A. C. Manalo, et W. Karunasena, « A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres », *Materials & Design*, vol. 47, p. 424-442, mai 2013, doi: 10.1016/j.matdes.2012.11.025.
- [62] A. Al-Maharma et N. Al-Huniti, « Critical Review of the Parameters Affecting the Effectiveness of Moisture Absorption Treatments Used for Natural Composites », *J. Compos. Sci.*, vol. 3, n° 1, p. 27, mars 2019, doi: 10.3390/jcs3010027.
- [63] A. Perrier, F. Touchard, L. Chocinski-Arnault, et D. Mellier, « Influence of water on damage and mechanical behaviour of single hemp yarn composites », *Polymer Testing*, vol. 57, p. 17-25, févr. 2017, doi: 10.1016/j.polymertesting.2016.10.035.

- [64] J. Verdu, « Action de l'eau sur les plastiques », *Plastiques et composites*, janv. 2000, doi: 10.51257/a-v1-am3165.
- [65] I. B. C. M. Rocha, S. Raijmakers, R. P. L. Nijssen, F. P. Van Der Meer, et L. J. Sluys, « Hygrothermal ageing behaviour of a glass/epoxy composite used in wind turbine blades », *Composite Structures*, vol. 174, p. 110-122, août 2017, doi: 10.1016/j.compstruct.2017.04.028.
- [66] Z. Kesentini, A. El Mahi, J. L. Rebiere, R. El Guerjouma, M. Beyaoui, et M. Haddar, « Static and Fatigue Tensile Behavior and Damage Mechanisms Analysis in Aged Flax Fiber/PLA Composite », *Int. J. Appl. Mechanics*, vol. 14, n° 08, p. 2250080, sept. 2022, doi: 10.1142/S1758825122500806.
- [67] B. Sala, X. Gabrion, F. Trivaudey, V. Guicheret-Retel, et V. Placet, « Influence of the stress level and hygrothermal conditions on the creep/recovery behaviour of high-grade flax and hemp fibre reinforced GreenPoxy matrix composites », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 141, p. 106204, févr. 2021, doi: 10.1016/j.compositesa.2020.106204.
- [68] A. Chilali, W. Zouari, M. Assarar, H. Kebir, et R. Ayad, « Effect of water ageing on the load-unload cyclic behaviour of flax fibre-reinforced thermoplastic and thermosetting composites », *Composite Structures*, vol. 183, p. 309-319, janv. 2018, doi: 10.1016/j.compstruct.2017.03.077.
- [69] W. Wang, X. Guo, D. Zhao, L. Liu, R. Zhang, et J. Yu, « Water Absorption and Hygrothermal Aging Behavior of Wood-Polypropylene Composites », *Polymers*, vol. 12, n° 4, p. 782, avr. 2020, doi: 10.3390/polym12040782.
- [70] F. K. Sodoke, L. Toubal, et L. Laperrière, « Hygrothermal effects on fatigue behavior of quasi-isotropic flax/epoxy composites using principal component analysis », *J Mater Sci*, vol. 51, n° 24, p. 10793-10805, déc. 2016, doi: 10.1007/s10853-016-0291-z.
- [71] P. K. Mungamurugu, P. Maru, H. H. Sardar, et S. Neogi, « Long term performance study of glass reinforced composites with different resins under marine environment », *Fibers Polym*, vol. 18, n° 1, p. 122-130, janv. 2017, doi: 10.1007/s12221-017-6543-y.
- [72] A. Malloum, A. E. Mahi, et M. Idriss, « The effects of water ageing on the tensile static and fatigue behaviors of greenpoxy-flax fiber composites », *Journal of Composite Materials*, vol. 53, n° 21, p. 2927-2939, sept. 2019, doi: 10.1177/0021998319835596.
- [73] A. B. Maslinda, M. S. Abdul Majid, M. J. M. Ridzuan, M. Afendi, et A. G. Gibson, « Effect of water absorption on the mechanical properties of hybrid interwoven cellulosic-cellulosic fibre reinforced epoxy composites », *Composite Structures*, vol. 167, p. 227-237, mai 2017, doi: 10.1016/j.compstruct.2017.02.023.
- [74] J. Lemaitre, « A Continuous Damage Mechanics Model for Ductile Fracture », *Journal of Engineering Materials and Technology*, vol. 107, n° 1, p. 83-89, janv. 1985, doi: 10.1115/1.3225775.
- [75] M. Ben Ameer *et al.*, « Investigation and identification of damage mechanisms of unidirectional carbon/flax hybrid composites using acoustic emission », *Engineering Fracture Mechanics*, vol. 216, p. 106511, juill. 2019, doi: 10.1016/j.engfracmech.2019.106511.
- [76] R. Barbière, F. Touchard, L. Chocinski-Arnault, et D. Mellier, « Influence of moisture and drying on fatigue damage mechanisms in a woven hemp/epoxy composite: Acoustic emission and micro-CT analysis », *International Journal of Fatigue*, vol. 136, p. 105593, juill. 2020, doi: 10.1016/j.ijfatigue.2020.105593.
- [77] Météo France, « Données Synop Essentielles OMM ». Consulté le: 8 juillet 2022. [En ligne]. Disponible sur: https://donneespubliques.meteofrance.fr/?fond=produit&id_produit=90&id_rubrique=32
- [78] 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, n° 10, p. 1615-1620, oct. 2009, doi: 10.1016/j.compositesa.2009.07.010.
- [79] J. Gassan et A. K. Bledzki, « Effect of cyclic moisture absorption desorption on the mechanical properties of silanized jute-epoxy composites », *Polym. Compos.*, vol. 20, n° 4, p. 604-611, août 1999, doi: 10.1002/pc.10383.
- [80] H. Kim et D. Seo, « Effect of water absorption fatigue on mechanical properties of sisal textile-reinforced composites », *International Journal of Fatigue*, vol. 28, n° 10, p. 1307-1314, oct. 2006, doi: 10.1016/j.ijfatigue.2006.02.018.
- [81] Freund, Ludovic, « Etude du vieillissement hygrothermique des composites renforcés de fibres naturelles : Approche expérimentale et modélisation », Thèse de doctorat, Université de Lorraine, LEM3, ENIM, Metz, 2018.
- [82] K. Mak et A. Fam, « The effect of wet-dry cycles on tensile properties of unidirectional flax fiber reinforced polymers », *Composites Part B: Engineering*, vol. 183, p. 107645, févr. 2020, doi: 10.1016/j.compositesb.2019.107645.
- [83] F. K. Sodoke, L. Toubal, et L. Laperrière, « Wetting/drying cyclic effects on mechanical and physicochemical properties of quasi-isotropic flax/epoxy composites », *Polymer Degradation and Stability*, vol. 161, p. 121-130, mars 2019, doi: 10.1016/j.polyimdegradstab.2019.01.014.

- [84] T. Cadu, L. Van Schoors, O. Sicot, S. Moscardelli, L. Divet, et S. Fontaine, « Cyclic hygrothermal ageing of flax fibers' bundles and unidirectional flax/epoxy composite. Are bio-based reinforced composites so sensitive? », *Industrial Crops and Products*, vol. 141, p. 111730, déc. 2019, doi: 10.1016/j.indcrop.2019.111730.
- [85] T. Cadu *et al.*, « 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, p. 36-46, oct. 2018, doi: 10.1016/j.compositesb.2018.04.059.
- [86] Axson Technologies, « Système époxy de stratification - Epolam 2020 ». [En ligne]. Disponible sur: https://www.polyplancomposites.fr/_dynamique/catalogues02/fichiers/ft-epolam-2020-42.pdf
- [87] Sicomin, « SR GreenPoxy 56 / SD 7561 - Fiche technique ». [En ligne]. Disponible sur: http://sicomin.com/datasheets/product-pdf_fr204.pdf
- [88] Arkema, « Catalogue des résines Elium® ». [En ligne]. Disponible sur: https://www.arkema.com/files/live/sites/shared_arkema/files/downloads/products-documentations/ProductSelector_ELIUM_2022.pdf
- [89] E. Boissin, C. Bois, J.-C. Wahl, T. Palin-Luc, et D. Caous, « Ply scale modelling of the quasi-static and fatigue behaviours of an acrylic-thermoplastic-matrix and glass-fibre-reinforced laminated composite covering the service temperature range of wind turbine blades », *International Journal of Fatigue*, vol. 152, p. 106413, nov. 2021, doi: 10.1016/j.ijfatigue.2021.106413.
- [90] Plateforme CANOE, « EFFIWIND projet: First 25m long wing blade manufactured using ELIUM resin ». Consulté le: 25 avril 2022. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.plateforme-canoe.com/en/effiwind-project-first-25m-long-wind-blade-manufactured-using-elium-resin/>
- [91] Epoxy Technology, « Guide d'application pour les époxies ». Consulté le: 24 février 2022. [En ligne]. Disponible sur: www.epotek.com
- [92] O. D. A. Raponi, L. C. M. Barbosa, B. R. De Souza, et A. C. Ancelotti Junior, « Study of the influence of initiator content in the polymerization reaction of a thermoplastic liquid resin for advanced composite manufacturing », *Adv Polym Technol*, vol. 37, n° 8, p. 3579-3587, déc. 2018, doi: 10.1002/adv.22142.
- [93] T. Instruments, « Thermal analysis - Differential Scanning Calorimetry - Data Sheet ». Consulté le: 20 février 2021. [En ligne]. Disponible sur: https://www.tainstruments.com/pdf/brochure/DSC_AQ20.pdf
- [94] H. Schreier, J.-J. Orteu, et M. A. Sutton, *Image Correlation for Shape, Motion and Deformation Measurements - Basic Concepts, Theory and Applications*, Springer New York, NY. 2009.
- [95] F. Xu, « Quantitative characterization of deformation and damage process by digital volume correlation: A review », *Theoretical and Applied Mechanics Letters*, vol. 8, n° 2, p. 83-96, mars 2018, doi: 10.1016/j.taml.2018.02.004.
- [96] B. Pan et B. Wang, « Some recent advances in digital volume correlation », *Optics and Lasers in Engineering*, vol. 135, p. 106189, déc. 2020, doi: 10.1016/j.optlaseng.2020.106189.
- [97] N. Vanderesse, M. Lagacé, F. Bridier, et P. Bocher, « An Open Source Software for the Measurement of Deformation Fields by Means of Digital Image Correlation », *Microsc Microanal*, vol. 19, n° S2, p. 820-821, août 2013, doi: 10.1017/S1431927613006090.
- [98] J. Yang, L. Hazlett, A. K. Landauer, et C. Franck, « Augmented Lagrangian Digital Volume Correlation (ALDVC) », *Exp Mech*, vol. 60, n° 9, p. 1205-1223, nov. 2020, doi: 10.1007/s11340-020-00607-3.
- [99] A. E. El Mahi, H. Daoud, J.-L. Rebiere, I. Gimenez, M. Taktak, et M. Haddar, « Damage mechanisms characterization of flax fibers-reinforced composites with interleaved natural viscoelastic layer using acoustic emission analysis », *Journal of Composite Materials*, vol. 53, n° 18, p. 2623-2637, août 2019, doi: 10.1177/0021998319836236.
- [100] A. Marec, J.-H. Thomas, et R. El Guerjouma, « Damage characterization of polymer-based composite materials: Multivariable analysis and wavelet transform for clustering acoustic emission data », *Mechanical Systems and Signal Processing*, vol. 22, n° 6, p. 1441-1464, août 2008, doi: 10.1016/j.ymsp.2007.11.029.
- [101] M. Assarar, D. Scida, W. Zouari, E. H. Saidane, et R. Ayad, « Acoustic emission characterization of damage in short hemp-fiber-reinforced polypropylene composites », *Polym. Compos.*, vol. 37, n° 4, p. 1101-1112, avr. 2016, doi: 10.1002/pc.23272.
- [102] M. Haggui, A. El Mahi, Z. Jendli, A. Akrou, et M. Haddar, « Static and fatigue characterization of flax fiber reinforced thermoplastic composites by acoustic emission », *Applied Acoustics*, vol. 147, p. 100-110, avr. 2019, doi: 10.1016/j.apacoust.2018.03.011.
- [103] H. Abdi et L. J. Williams, « Principal component analysis: Principal component analysis », *WIREs Comp Stat*, vol. 2, n° 4, p. 433-459, juill. 2010, doi: 10.1002/wics.101.
- [104] « Visualizing K-Means algorithm with D3.js ». Consulté le: 31 mai 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://kkevsterrr.github.io/K-Means/>
- [105] F. ImageJ, « Auto Local Threshold », Auto Local Threshold. Consulté le: 18 mai 2021. [En ligne]. Disponible sur: <https://imagej.net/plugins/auto-local-threshold>

- [106] J. Sauvola et M. Pietikäinen, « Adaptive document image binarization », *Pattern Recognition*, vol. 33, n° 2, p. 225-236, févr. 2000, doi: 10.1016/S0031-3203(99)00055-2.
- [107] F. ImageJ, « Trainable Weka Segmentation », Trainable Weka Segmentation. Consulté le: 24 mai 2022. [En ligne]. Disponible sur: <https://imagej.net/plugins/tws/>
- [108] S. Orenes Balaciart, Y. Pannier, M. Gigliotti, D. Mellier, et C. Guigon, « Effect of Temperature on Damage Onset in Three-Dimensional (3D) Woven Organic Matrix Composites for Aero-Engines Application », présenté à European Conference on Composite Materials (ECCM20), European Conference on Composites Materials (ECCM20), Lausanne, Suisse, juin 2022.
- [109] W. Albouy, B. Vieille, et L. Taleb, « Influence of matrix ductility on the high-temperature fatigue behaviour of quasi-isotropic woven-ply thermoplastic and thermoset laminates », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 67, p. 22-36, déc. 2014, doi: 10.1016/j.compositesa.2014.07.012.
- [110] M. G. R. Sause, S. Schmitt, et S. Kalafat, « Failure load prediction for fiber-reinforced composites based on acoustic emission », *Composites Science and Technology*, vol. 164, p. 24-33, août 2018, doi: 10.1016/j.compscitech.2018.04.033.
- [111] M. Zhang, Q. Meng, S. Liu, D. Qian, et N. Zhang, « Impacts of Cyclic Loading and Unloading Rates on Acoustic Emission Evolution and Felicity Effect of Instable Rock Mass », *Advances in Materials Science and Engineering*, vol. 2018, p. 1-16, 2018, doi: 10.1155/2018/8365396.
- [112] C. Guillebaud-Bonnafoous, D. Vasconcellos, F. Touchard, et L. Chocinski-Arnault, « Experimental and numerical investigation of the interface between epoxy matrix and hemp yarn », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, n° 11, p. 2046-2058, nov. 2012, doi: 10.1016/j.compositesa.2012.07.015.
- [113] H. Bel Haj Frej, R. Léger, D. Perrin, et P. Ienny, « Effect of aging temperature on a thermoset-like novel acrylic thermoplastic composite for marine vessels », *Journal of Composite Materials*, vol. 55, n° 19, p. 2673-2691, août 2021, doi: 10.1177/0021998321996780.
- [114] A. Céline, O. Gonçalves, F. Jacquemin, et S. Fréour, « Qualitative and quantitative assessment of water sorption in natural fibres using ATR-FTIR spectroscopy », *Carbohydrate Polymers*, vol. 101, p. 163-170, janv. 2014, doi: 10.1016/j.carbpol.2013.09.023.
- [115] M. Pecora, O. Smerdova, et M. Gigliotti, « Gradients of cyclic indentation mechanical properties in PR520 epoxy and its 3D carbon fiber composite induced by aging at 150 °C », *Polymer Degradation and Stability*, vol. 193, p. 109720, nov. 2021, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2021.109720.
- [116] S. Konica et T. Sain, « A thermodynamically consistent chemo-mechanically coupled large deformation model for polymer oxidation », *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 137, p. 103858, avr. 2020, doi: 10.1016/j.jmps.2019.103858.
- [117] X. Colin et J. Verdu, « Polymer degradation during processing », *Comptes Rendus Chimie*, vol. 9, n° 11-12, p. 1380-1395, nov. 2006, doi: 10.1016/j.crci.2006.06.004.
- [118] E. Arnault, E. Richaud, et B. Fayolle, « Thermal oxidation of epoxies: Influence of diamine hardener », *Polymer Degradation and Stability*, vol. 134, p. 76-86, déc. 2016, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2016.09.030.
- [119] M. C. Lafarie-Frenot et F. Touchard, « Comparative in-plane shear behaviour of long-carbon-fibre composites with thermoset of thermoplastic matrix », *Composites Science and Technology*, vol. 52, p. 417-425, 1994, doi: [https://doi.org/10.1016/0266-3538\(94\)90176-7](https://doi.org/10.1016/0266-3538(94)90176-7).
- [120] D. Gay, *Matériaux Composites*, 4ème. in Matériaux. Paris: Hermes, 1997.
- [121] A. Perrier *et al.*, « Towards the development of laser shock test for mechanical characterisation of fibre/matrix interface in eco-composites », *Polymer Testing*, vol. 44, p. 125-134, juill. 2015, doi: 10.1016/j.polymertesting.2015.04.003.

Multi-scale analysis of the effects of hydrothermal fatigue on the mechanical behavior and damage mechanisms of hemp-reinforced composites

Composite materials with synthetic reinforcement, such as glass, exhibit a high carbon footprint that does not match with the recent warnings from the IPCC reports. Solutions exist to limit this carbon footprint, notably by replacing synthetic reinforcements with plant-based ones and using bio-sourced and/or recyclable resins. However, the high hydrophilicity of plant fibers must be considered for applications subjected to outdoor conditions involving temperature and humidity variations. In this study, the effects of hydrothermal fatigue on the behavior of woven hemp-reinforced composites were analyzed. Three different resins were used: two thermosetting polymers, Epolam and Greenpoxy, the latter being partially bio-sourced, and a thermoplastic polymer, Elium, which is recyclable. Additionally, for comparative purposes, glass/Epolam composites were manufactured. Two fabric orientations were considered: $0^\circ/90^\circ$ and $\pm 45^\circ$.

At first, a study on unaged specimens of polymers, hemp yarns, and single yarn composites was conducted to characterize the initial properties of the components and the behavior of the fiber/matrix interface. A fragmentation test was carried out on a hemp/Epolam specimen filled with fine Al_2O_3 particles to determine the volumetric deformation fields through 3D digital image correlation based on microtomographic scans recorded at different strain levels.

To determine the parameters of the hydrothermal fatigue cycles, various immersion temperatures were tested and the mechanical properties of water-saturated woven composites were compared. The chosen hydrothermal fatigue cycles consisted of an immersion phase in water at $60^\circ C$ for 12 days followed by drying in an oven at $40^\circ C$ for 2 days. Up to thirty cycles of hydrothermal fatigue were performed, representing 420 days of aging. During this aging process, the water absorption behavior of all composites was analyzed, and it was shown that a one-dimensional Fick's law could be applied. After different numbers of hydrothermal fatigue cycles, repeated progressive tensile loading tests were conducted. For hemp-reinforced composites, a significant degradation of mechanical properties was observed during hydrothermal fatigue, starting from the first cycle, followed by a stabilization. In contrast, glass/Epolam composites exhibited a continuous and progressive degradation of their properties with the number of hydrothermal fatigue cycles. Acoustic emission monitoring was conducted during the mechanical tests, and microtomographies were recorded before and after mechanical testing, enabling a quantitative analysis of damage. The results highlighted the significant influence of the choice of resin on hydrothermal fatigue behavior. Furthermore, a substantial stiffening of the aged samples at the end of the tensile tests was observed, despite the development of a large amount of damage, such as interfacial debonding and matrix cracking. For $\pm 45^\circ$ composites, an analytical calculation based on the composite laminate theory demonstrated the role in this stiffening of the reorientation of the yarns in the tensile direction. For $0^\circ/90^\circ$ composites, an in-situ tensile test in a microtomograph was performed on a hemp/Elium specimen that has been subjected to 15 hydrothermal fatigue cycles. The combination of this test with a finite element analysis highlighted the effect of the straightening of the warp yarns on the stiffening observed. Finally, damage scenarios were proposed to describe the mechanical behavior of biocomposites after hydrothermal fatigue.

Keywords: Hemp, Fibrous composites--Mechanical properties, Composite materials--Deterioration, Thermosetting composites, Thermoplastic composites, Deformations (Mechanics), Plant fibers, Tomography, Hydrothermal fatigue, Fiber/matrix interface, Epolam, Greenpoxy, Elium, Biocomposites, Aging

Analyse multi-échelle des effets de la fatigue hydrique sur le comportement mécanique et les mécanismes d'endommagement de composites à renfort de chanvre

Les composites à renfort synthétique, tel que le verre, présentent un bilan carbone trop élevé pour répondre aux alertes des derniers rapports du GIEC. Des solutions existent pour réduire cette empreinte carbone, notamment en remplaçant les renforts de verre par des renforts végétaux et en utilisant des résines bio-sourcées et/ou recyclables. Cependant, le caractère fortement hydrophile des fibres végétales est à prendre en compte pour des applications soumises aux conditions extérieures (variations de température et d'humidité). Dans le cadre de cette étude, les effets de la fatigue hydrique sur le comportement de composites à renfort tissé de chanvre ont été analysés. Trois résines différentes ont été utilisées : deux polymères thermodurcissables, Epolam et Greenpoxy, ce dernier étant partiellement bio-sourcé, et un polymère thermoplastique, l'Elium, qui est recyclable. De plus, à des fins comparatives, des composites verre/Epolam ont été fabriqués. Deux orientations de tissu ont été considérées : $0^\circ/90^\circ$ et $\pm 45^\circ$.

Tout d'abord, une étude sur des éprouvettes non vieilles de polymères, de fils de chanvre seuls et de composites monofilamentaires a été menée pour caractériser les propriétés initiales des constituants et le comportement de l'interface fil/matrice. Une éprouvette de fragmentation en chanvre/Epolam chargée de fines particules d'alumine a été fabriquée pour pouvoir suivre les champs de déformation volumiques par corrélation d'images numériques 3D basée sur des scans microtomographiques enregistrés à différents niveaux de déformation.

Pour déterminer les paramètres des cycles de fatigue hydrique, différentes températures d'immersion ont ensuite été testées et les propriétés mécaniques des composites tissés saturés en eau ont été comparées. Les cycles de fatigue hydrique choisis sont finalement constitués d'une phase d'immersion dans l'eau à 60°C durant douze jours suivie d'un séchage en étuve à 40°C pendant deux jours. Jusqu'à trente cycles de fatigue hydrique ont été réalisés, représentant 420 jours de vieillissement. Durant ce vieillissement, le comportement à l'absorption de l'ensemble des composites a été analysé. Il a été montré qu'une loi de Fick 1D pouvait s'appliquer. Après différents nombres de cycles de fatigue hydrique, des essais de traction à chargements répétés progressifs ont été effectués. Il a ainsi été observé, pour les composites à renfort de chanvre, une forte dégradation des propriétés mécaniques au cours de la fatigue hydrique, dès le premier cycle, suivie par une stabilisation. À l'opposé, les composites verre/Epolam ont montré une dégradation continue et progressive de leurs propriétés avec le nombre de cycles de fatigue hydrique. Un suivi par émission acoustique a été opéré pendant les essais et des microtomographies ont été enregistrées avant et après essai, permettant une analyse quantitative des endommagements. Les résultats ont montré la forte influence du choix de la résine sur le comportement en fatigue hydrique. D'autre part, une rigidification significative en fin d'essai de traction des échantillons vieillis a été mise en évidence, et ce, malgré le développement de nombreux endommagements (décohésions interfaciales et fissurations matricielles). Pour les composites $\pm 45^\circ$, un calcul analytique basé sur la théorie des stratifiés a montré le rôle dans cette rigidification de la réorientation des renforts dans la direction de traction. Pour les composites $0^\circ/90^\circ$, un essai de traction in situ sous microtomographe a été effectué sur une éprouvette de chanvre/Elium ayant subi 15 cycles de fatigue hydrique. La combinaison de cet essai avec un calcul par éléments finis a mis en évidence l'effet du redressement des fils de chaîne sur la rigidification observée. Au final, des scénarios d'endommagement ont été proposés pour décrire le comportement mécanique des biocomposites après vieillissement par fatigue hydrique.

Mots clés : Chanvre, Composites à fibres--Propriétés mécaniques, Composites--Détérioration, Composites thermodurcissables, Composites thermoplastiques, Composites tissés, Déformation (mécanique), Fibres végétales, Tomographie, Fatigue hydrique, Interface fil/matrice, Epolam, Greenpoxy, Elium, Biocomposites, Vieillissement