



**HAL**  
open science

# Biocomposites à empilement non symétrique pour étudier l'influence des déformations hygroscopiques sur leur comportement hydrique

Antoine Le Duigou, Mickael Castro, Amandine Céline, Mael Péron, Frédéric Jacquemin

## ► To cite this version:

Antoine Le Duigou, Mickael Castro, Amandine Céline, Mael Péron, Frédéric Jacquemin. Biocomposites à empilement non symétrique pour étudier l'influence des déformations hygroscopiques sur leur comportement hydrique. Journées Nationales sur les Composites 2017, École des Ponts ParisTech (ENPC), Jun 2017, 77455 Champs-sur-Marne, France. hal-01621600

**HAL Id: hal-01621600**

**<https://hal.science/hal-01621600>**

Submitted on 23 Oct 2017

**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.

# **Biocomposites à empilement non symétrique pour étudier l'influence des déformations hygroscopiques sur leur comportement hydrique**

## *Asymmetric biocomposite laminates to study their hygroscopic stresses*

Antoine Le Duigou<sup>1</sup>, Mickael Castro<sup>1</sup>, Amandine Céline<sup>2</sup>, Mael Peron<sup>2</sup>, Frédéric Jacquemin<sup>2</sup>

1 : Université Bretagne-Sud  
IRDL FRE CNRS, Pole Thématique Composite,  
Rue Saint-Maudé, B 92 116 ; 56321 Lorient Cedex  
[Antoine.le-duigou@univ-ubs.fr](mailto:Antoine.le-duigou@univ-ubs.fr); [mickael.catro@univ-ubs.fr](mailto:mickael.catro@univ-ubs.fr)

2 : Université de Nantes  
GeM, Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique  
58 rue Michel Ange, BP420, 44600 Saint-Nazaire  
[amandine.celino@univ-nantes.fr](mailto:amandine.celino@univ-nantes.fr); [mael.peron@univ-nantes.fr](mailto:mael.peron@univ-nantes.fr); [frederic.jacquemin@univ-nantes.fr](mailto:frederic.jacquemin@univ-nantes.fr)

### **Résumé**

Les fibres végétales présentent un comportement hydrophile marqué conduisant à une absorption d'eau associée à un gonflement important, en milieu humide. Ce gonflement hygroscopique, lié à la microstructure des fibres, est élevé en comparaison de systèmes synthétiques (verre, carbone). Ainsi, à l'échelle d'un stratifié, la variation d'humidité conduit généralement à un état de déformations hygroscopiques qu'il convient d'appréhender afin de garantir la pérennité des pièces en biocomposites. L'utilisation d'un stratifié à empilement non symétrique 0/90° soumis à une variation d'humidité, montre l'apparition de contraintes hygroscopiques qui se traduisent par un moment fléchissant et une courbure. Tirant profit de ce comportement, ces stratifiés sont développés pour créer des actionneurs hygromorphes capables de réagir à une variation d'humidité. Ils peuvent être également utilisés comme des outils expérimentaux pour caractériser l'état de déformation au sein du matériau et potentiellement les couplages avec la prise de masse et le gonflement. L'objectif de ce travail est de mieux appréhender les phénomènes de gonflement hygroscopique multi-échelles en interprétant les rayons de courbure induits par une sollicitation hygroscopique (immersion) à l'échelle d'un stratifié assymétrique. L'étude de la courbure dans le stratifié permet de remonter à l'état de contraintes au sein du biocomposite humide.

### **Abstract**

Plant fibers have a strong hydrophilic behavior leading to a water absorption associated with a large swelling in humid conditions. This hygroscopic deformation linked to the fiber microstructure is high compared to synthetic fibers (glass, carbon). Thus, on a laminate scale, the change in humidity leads to hygroscopic strains and stresses gradient. This must be understood in order to guarantee the durability of biocomposites parts. The use of a 0/90 ° non-symmetrical laminates subjected to a variation in humidity shows hygroscopic stresses which result in a bending moment and a curvature. Taking advantage of this behavior, these laminates are developed to create hygromorph actuators. This kind of laminates can also be used as experimental tools to characterize the strain state within the material and the couplings existing between the diffusion and swelling. Then, the aim of this work is to better understand the phenomena of hygroscopic swelling on plant fiber scale by using the curvature induced by a hygroscopic stress state (immersion) on the scale of a non-symmetrical laminate. Moreover, the study of the laminate curvature enables to find the stresses gradient induced by water in the biocomposite.

**Mots Clés :** biocomposites, bilames, courbure, contraintes hygroscopiques, gonflement hygroscopique, diffusion d'humidité

**Keywords :** biocomposites, bilayer, curvature, hygroscopic stresses, swelling, water diffusion

## **1. Introduction**

Les fibres végétales présentent un comportement hydrophile marqué conduisant à une absorption d'eau associée à un gonflement important, en milieu humide [1]. Ce gonflement hygroscopique influencé par la microstructure des parois peut être très anisotrope et élevé en comparaison de systèmes synthétiques (verre, carbone). Certains travaux rapportent une déformation radiale de

l'ordre de 20% pour des fibres de lin soumises à une condition d'humidité relative de 95% [2]. Ainsi, à l'échelle d'un stratifié, la variation d'humidité conduit généralement à un état de déformation hygroscopique qu'il convient d'appréhender afin de garantir la pérennité des pièces en biocomposites. En effet, le gonflement différentiel entre fibres/matrice et entre plis est souvent considéré comme étant une source majeure d'endommagement des biocomposites [3][4].

L'utilisation d'un stratifié à empilement non symétrique 0/90° soumis à une variation d'humidité ou de température, met en avant l'apparition de contraintes hygroscopiques ou thermiques qui se traduisent par un moment fléchissant et une courbure [5]. Ces stratifiés sont utilisés comme des outils expérimentaux pour caractériser l'état de déformation au sein du matériau et potentiellement les couplages avec la prise de masse et le gonflement. Actuellement, les biocomposites à empilement assymétrique sont développés pour créer des actionneurs hygromorphes capables de réagir à une variation d'humidité. Ils sont inspirés d'actionneurs naturels hydrauliques comme la pomme de pin [6][7][8].

L'objectif de ce travail est de mieux appréhender les phénomènes de gonflement hygroscopique dans les matériaux biocomposites en interprétant les rayons de courbure induits par une sollicitation hygroscopique (pendant l'immersion) à l'échelle d'un stratifié assymétrique. L'étude de la courbure dans le stratifié permet de remonter à l'état de contrainte au sein du biocomposite humide.

## 2. Matériaux et méthodes

### 2.1. Matériaux

Des fibres de lin (*Linum usitatissimum*) cultivées en France puis rouies au sol avant teillage et peignage ont été utilisées comme renfort. Les fibres de lin sont composées de 75-87 % de résidus cellulosiques, 6-14% d'hémicelluloses, 2-3% de lignines et 5-11% de pectines [9]. Les nappes de fibres unidirectionnelles (200g/m<sup>2</sup> et 50g/m<sup>2</sup>) sont fournies par Lineo®.

Des films de PolyPropylène greffé à l'anhydride maléique (MAPP) (PPC 3660 Total Petrochemicals et Arkema Orevac CA 100) sont utilisés comme matrice. Ensuite, l'empilement de films de polymère MAPP et de plis de nappes unidirectionnels de lin est préparé dans un moule métallique (13 x 13 cm<sup>2</sup>). La fraction volumique de fibres est fixée à 60% et pour cette étude, 2 empilements sont retenus : l'empilement UD [90<sub>6</sub>] et l'empilement [0<sub>1</sub>,90<sub>5</sub>] car ce dernier permet la réponse optimale de l'actionneur [10]. L'épaisseur des stratifiés est d'environ 0.460mm.

Les conditions du procédé de thermocompression utilisées sont similaires à celles précédemment publiées [11]. La vitesse de refroidissement est fixée à 15°C/min.

Initialement prévues pour le développement d'actionneurs hygromorphes, des bandes de rapport d'aspect élevé (70 mm x 10 mm<sup>2</sup>) sont découpées afin de réduire la courbure transverse [12].

### 2.2. Méthodes expérimentales

#### 2.2.1. Cinétiques de diffusion

Les différentes éprouvettes ont été initialement conditionnées dans une salle climatisée, à 50% d'humidité relative et à température ambiante (23°C). Cette étape permet d'atteindre l'état de référence correspondant à un champ de teneur en eau uniforme dans le volume de l'échantillon. Elles ont ensuite été immergées dans de l'eau distillée à température ambiante jusqu'à ce que la saturation soit atteinte. Au cours du vieillissement humide, un suivi gravimétrique régulier a permis de tracer l'évolution de la teneur en eau en fonction du temps pour accéder aux cinétiques de diffusion (Eq.1). Pour chaque cas (UD et stratifié) 3 éprouvettes ont été testées. Les courbes présentées dans la partie résultat représentent la moyenne arithmétique de ces 3 éprouvettes.

$$C(\%) = \frac{m_t - m_0}{m_0} \times 100 \quad (\text{Eq. 1})$$

#### 2.2.2. Gonflement hygroscopique

Trois plaques de composites UD (50x50 mm<sup>2</sup>) sont utilisées pour les mesures. Des lignes ont été tracées puis 3 points sur chacune de celle-ci ont été marqués afin de suivre la dilatation hygroscopique transversale (sens perpendiculaire aux fibres de lin) et longitudinale (dans le sens des fibres) du biocomposite. L'exploitation de ces courbes permet d'accéder aux coefficients de gonflement hygroscopique du composite MAPP/lin (cf. partie 2.3).

### 2.2.3. Mesure de la courbure

La courbure du biocomposite lors de son immersion en eau desionisé est estimée périodiquement par analyse d'images de la tranche d'un échantillon encastrée (sur une longueur de 10mm). Le logiciel d'analyse d'images utilisé est ImagJ® (National Institutes of Health, USA). Le rayon de courbure, constant le long de l'échantillon, est estimé en minimisant l'évolution des coordonnées de l'échantillon avec les coordonnées d'un cercle [6].

### 2.2.4. Propriétés hygro-élastiques

Pour simuler l'état de contraintes dans le biocomposite assymétrique, il est nécessaire de connaître l'évolution des propriétés hygro-élastiques à l'échelle d'un pli entre l'état de référence (état sec) et l'état humide (état saturé). Pour ce travail, les modules de Young longitudinal et transversal  $E$  de la plaque UD sèche et humide ont été déterminés par des essais de traction. Les résultats sont affichés dans le tableau 1 (Tab.1), avec l'allongement  $\varepsilon$  et la contrainte à la rupture  $\sigma$ .

		<b>E (MPa)</b>	<b><math>\varepsilon</math> (%)</b>	<b><math>\sigma</math> (MPa)</b>
Sec	Longitudinal	30950±2107	1,0±0,2	232,7±18,2
	Transversal	1791±180	0,5±0,1	7,3±0,9
Humide (C=33.5 ± 2.1 %)	Longitudinal	11318±1697	1,2±0,3	136,2±7,3
	Transversal	932±146	1,8±0,2	2,9±0,2

Tab. 1. Propriétés hygro-élastiques d'un pli biocomposite UD PP+MaPP/lin ( $v_f=60\%$ ).

## 2.3. Méthodes numériques

### 2.3.1. Modélisation de la courbure et des états mécaniques

Afin de retranscrire le comportement du matériau et ainsi prédire l'évolution de sa courbure au cours de l'immersion, un modèle hygro-mécanique a été mis en place. Celui-ci se base sur la théorie modifiée des stratifiés [13,14], et prend en compte l'évolution des propriétés hygro-élastiques avec la teneur en eau, ainsi que le gonflement hygroscopique des plis. La diffusion de l'eau est modélisée à l'aide d'un schéma en différences finies 1D à travers l'épaisseur du stratifié, ce qui permet d'obtenir la distribution de teneur en eau dans le stratifié et donc de voir l'influence des gradients de teneur en eau sur le comportement du matériau. Ce modèle est alimenté à l'aide des différentes propriétés identifiées auparavant.

Deux stratégies ont été employées afin de modéliser l'évolution des propriétés hygro-élastiques avec la teneur en eau. La première consiste en une interpolation linéaire des propriétés entre l'état sec et l'état saturé. La seconde se base sur une évolution en tangente hyperbolique de ces propriétés, avec une forte diminution aux faibles teneurs en eau ( $C < 5\%$ ). On retrouve ce type d'évolution dans diverses études [15, 16]. L'évolution de ces propriétés est représentée en (Fig. 1) pour les deux *scenarii* envisagés.

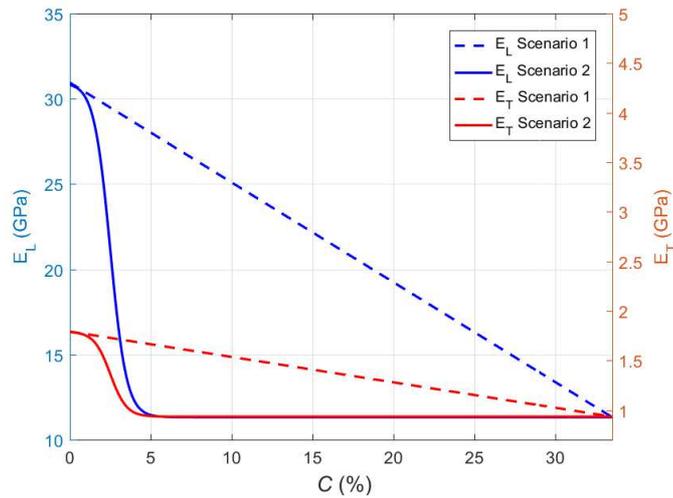


Fig. 1. Evolution des modules élastiques en fonction de la teneur en eau  $C$  pour les deux scénarii envisagés.

Le modèle hygro-mécanique est également utilisé afin d'identifier les coefficients de gonflement hygroscopique en prenant en compte les gradients de teneur en eau dans le matériau. Pour cela, l'expérience réalisée sur le stratifié unidirectionnel est modélisée. L'évolution des coefficients de gonflement hygroscopique est alors déterminée de manière à minimiser l'écart entre déformations expérimentales et numériques. Les résultats sont présentés dans la partie 3.2.

### 2.3.2. Identification des paramètres de diffusion

Pour une première approche, nous avons utilisé le modèle de diffusion le plus couramment utilisé pour décrire les cinétiques de diffusion : le modèle de Fick. Une cinétique suivant ce modèle se caractérise par deux parties distinctes : une première partie linéaire suivie d'un plateau de saturation correspondant à la capacité maximale d'absorption du matériau ( $C_s$ ).

Dans notre cas, la géométrie des éprouvettes est telle que l'épaisseur ( $\approx 0.46$  mm) est très mince comparée aux autres dimensions. On fait ainsi l'hypothèse d'une diffusion unidimensionnelle. Une solution analytique à ce problème est donnée par Crank [17] dans le cas d'une plaque mince caractérisée par un coefficient de diffusion constant (Eq.2).

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

où  $C(t)$  est la teneur en eau globale (%) à l'instant  $t$ ,  $C_s$  la teneur en eau à saturation (%) et  $D$  correspond au coefficient de diffusion ( $\text{mm}^2/\text{s}$ ).

Les coefficients de diffusion des éprouvettes UD et du bilame ont été calculés à partir de cette équation et des données expérimentales. En minimisant la somme quadratique des écarts entre les valeurs expérimentales et les valeurs prédites par le modèle, on obtient les cinétiques présentées dans la partie résultat. Les résultats numériques, présentés par la suite, ont été réalisés à l'aide du logiciel open source *Scilab*©.

### 3. Résultats et discussion

#### 3.1. Cinétiques de diffusion

Les cinétiques de diffusion obtenues par relevés gravimétriques périodiques pour les éprouvettes composées de polypropylène greffé avec de l'anhydride maléique et de 60% de fibres de lin en version UD [90<sub>6</sub>] et en version composite assymétrique [0<sub>1</sub>,90<sub>5</sub>] sont présentées sur la figure 2 (Fig. 2). La figure met en évidence, une dépendance de la capacité maximale d'absorption (Cs) à l'empilement du composite, alors que ceci n'influence que faiblement la valeur du coefficient de diffusion (cf. Tab. 2, Fig. 3). Les valeurs identifiées pour les coefficients de diffusion sont conformes aux valeurs de la littérature pour ce type de matériaux bio-sourcés [18]. Ces résultats indiquent que l'état mécanique induit par la courbure dans le cas de l'éprouvette bilame, semble influencer directement la capacité du matériau à absorber de l'eau. Ces états mécaniques ont été calculés selon la méthode décrite dans la partie 2.3., à partir des coefficients de diffusion identifiés, et sont présentés et discutés dans la partie 3.4. Pour la suite, il serait intéressant de tester des modèles de diffusion tenant compte de la diffusion d'humidité dans plusieurs phases (type Langmuir ou dual Fick) pour mieux appréhender les phénomènes physiques mis en jeu lors de l'absorption d'humidité dans ces matériaux.

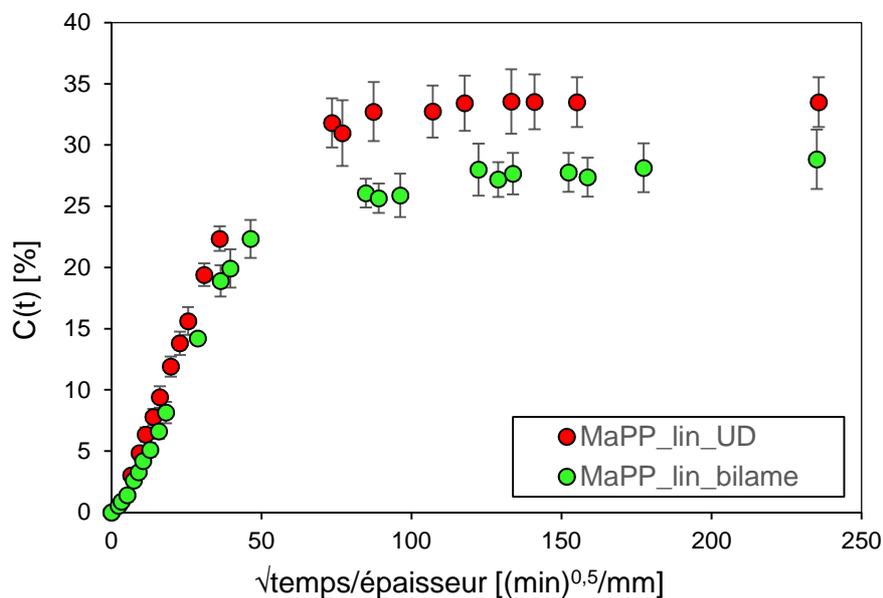


Fig. 2. Cinétiques de diffusion du biocomposite UD et du biocomposite assymétrique [0<sub>1</sub>,90<sub>5</sub>] rapporté à l'épaisseur.

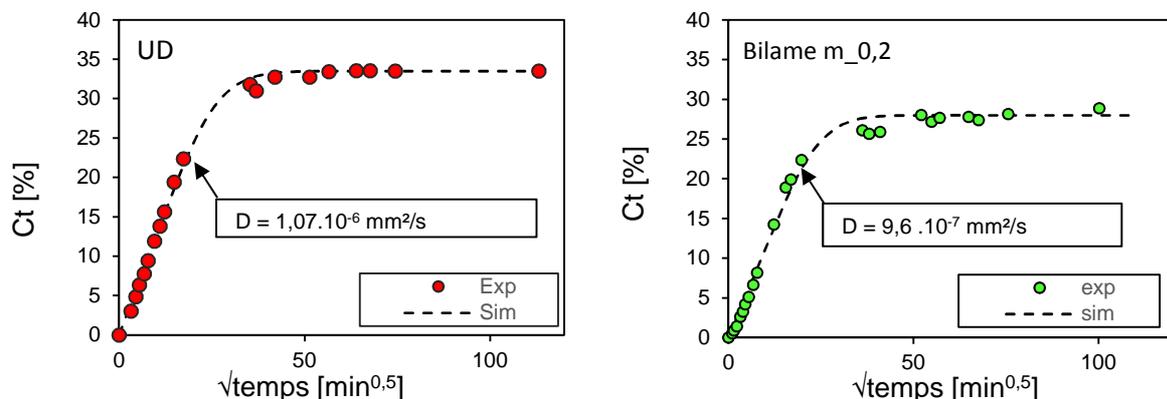


Fig. 3. Modélisation du comportement diffusif des plaques composites avec différents empilements par un modèle de Fick.

	<b>D (mm<sup>2</sup>/s)</b>	<b>Cs (%)</b>
UD [90 <sub>6</sub> ]	1,07.10 <sup>-6</sup>	33
Bilame [0 <sub>1</sub> , 90 <sub>5</sub> ]	9,6.10 <sup>-7</sup>	28

Tab. 2. Identification des paramètres de diffusion selon le modèle de Fick.

### 3.2. Dilatation hygroscopique

L'évolution de l'allongement relatif transversal et longitudinal du pli composite UD [90<sub>6</sub>] en fonction de la teneur en eau est présentée sur la figure 4 (Fig.4). La courbe met en évidence un comportement fortement anisotrope de l'allongement. Dans le sens des fibres de lin (sens longitudinal), l'allongement est quasi nul alors que dans le sens transverse aux fibres, l'allongement atteint 3,2 % environ. Les travaux issus de la bibliographie rapportent un gonflement longitudinal négatif et un gonflement transversal d'environ 20%, à l'échelle de la fibre unitaire de lin [19].

Il semblerait que l'état de confinement de la fibre végétale dans le composite contrarie son gonflement à l'échelle locale. Il s'agit de résultats concomitants avec ceux de Joffre *et al* [20]. D'autre part, la courbe montre que l'allongement transversal n'évolue pas tout à fait de façon linéaire avec la teneur en eau. Ceci a déjà été observé dans le cas de fibres de polyamide [16]. Ce comportement non-linéaire implique un coefficient de dilatation hygroscopique  $\beta$  (défini dans la partie 2.3) dépendant de la teneur en eau. Ainsi, il est nécessaire de développer une loi de comportement locale pour le coefficient de dilatation hygroscopique qui soit fonction de la teneur en eau locale. Cette teneur en eau locale est déduite de la solution analytique donnée par Crank [17] (Eq. 2).

A partir de cette courbe, une première approche pour déterminer le coefficient de dilatation hygroscopique dépendant de la teneur en eau a été utilisée. L'identification de ce coefficient permet d'alimenter le modèle hygro-élastique développé. On obtient un coefficient de gonflement négatif dans la direction longitudinale  $\beta_L = -5,5 \cdot 10^{-3}$  %allongement/%H<sub>2</sub>O. Le coefficient de gonflement hygroscopique dans la direction transverse aux fibres est positif, et prend la valeur de  $\beta_T = 0.01$  %allongement/%H<sub>2</sub>O pour une teneur en eau inférieure à 25% et  $\beta_T = 0.33$  %allongement/%H<sub>2</sub>O au-delà de 25% de teneur en eau.

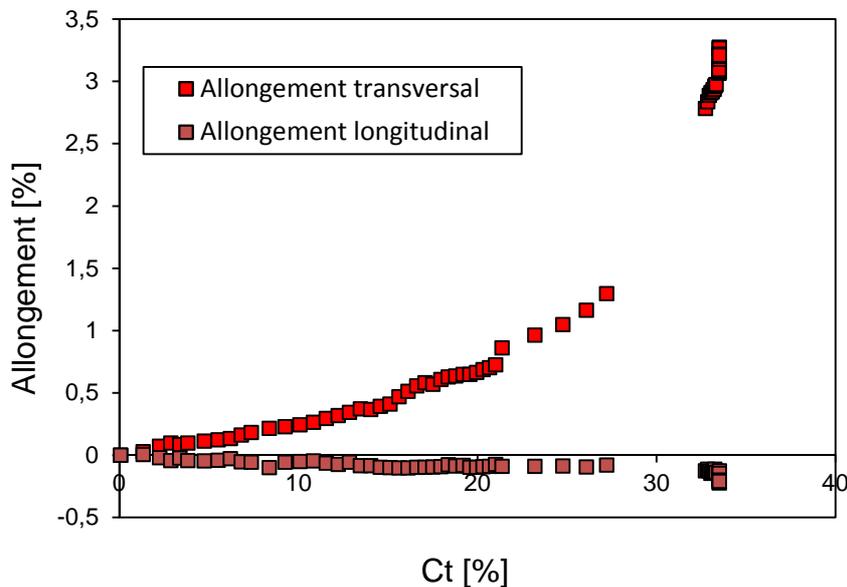


Fig. 4. Allongement relatif longitudinal et transversal dans un pli biocomposite UD PP+MaPP/lin (60%).

### 3.3. Courbure

Expérimentalement, le biocomposite à empilement asymétrique [0<sub>1</sub>,90<sub>5</sub>] subit une forte courbure longitudinale liée au gonflement différentiel des plis (Fig 5).

La relation entre la courbure (déformation hygroscopique) et la prise de masse s'avère complexe. On observe une première phase (Fig 5),  $0 < Ct < 8\%$  une relation quasi-linéaire entre la courbure et la prise de masse. Enfin pour  $Ct > 8\%$ , l'état de déformation se stabilise alors que la prise de masse continue d'augmenter.

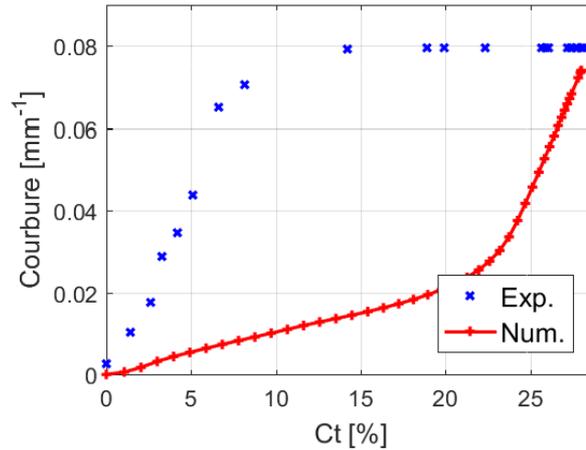


Fig. 5. Evolution des courbures hygroscopiques expérimentale et numérique du biocomposite assymétrique  $[0,90s]$  au cours du temps d'immersion.

L'expérience d'immersion du bilame est reproduite à l'aide du modèle. Celui-ci permet de déterminer l'évolution de la courbure et de l'état de contraintes du bilame au cours du temps. La courbure prédite est comparée à la courbure mesurée en (Fig. 5). Bien que les valeurs de la courbure à saturation soient proches ( $0.08 \text{ mm}^{-1}$  expérimentalement et  $0.074 \text{ mm}^{-1}$  numériquement), de forts écarts apparaissent durant le régime transitoire (de 0 à  $40 \text{ min}^{1/2}$ ). Durant cette phase; l'évolution numérique de la courbure se fait en deux parties, correspondant aux deux valeurs de  $\beta_T$  identifiées précédemment. Cette évolution est relativement identique pour les deux *scenarii* envisagés pour l'évolution des propriétés mécaniques du matériau. Les écarts entre courbure numérique et expérimentale peuvent s'expliquer en partie par la forte sensibilité du modèle aux valeurs de coefficient de gonflement hygroscopique. Des compléments d'explications sont donnés en section 3.5.

### 3.4. Etats mécaniques internes

La diffusion d'eau crée un champ de teneur en eau qui évolue dans l'épaisseur de l'échantillon en fonction du temps de vieillissement. Ce champ de teneur en eau induit un gonflement différentiel dans l'épaisseur responsable de la création d'un champ de contraintes internes évoluant avec la teneur en eau globale absorbée (mesurée expérimentalement). Ainsi, le modèle permet de remonter aux états mécaniques internes au cours du phénomène de diffusion et à l'état saturé. Dans le cas du biocomposite UD, à l'état saturé, l'état de contrainte est nul, ce qui n'est pas le cas pour le composite assymétrique.

L'état de contraintes à travers l'épaisseur  $z$  du stratifié courbé, à l'état saturé est représenté en (Fig. 6), où  $\sigma_{11}$  et  $\sigma_{22}$  sont les composantes dans les directions longitudinale et transverse aux fibres, respectivement. On remarque que la majorité des plis se trouve en traction suivant la direction longitudinale aux fibres, excepté la partie extérieure du pli à  $0^\circ$  qui se trouve en compression suivant cette direction ( $0.21 \text{ mm} < z < 0.23 \text{ mm}$ ). Suivant la direction transverse aux fibres, les plis inférieurs se trouvent en traction ( $-0.23 \text{ mm} < z < -0.10 \text{ mm}$ ), mais la majeure partie des plis est soumise à un état de compression suivant cette direction.

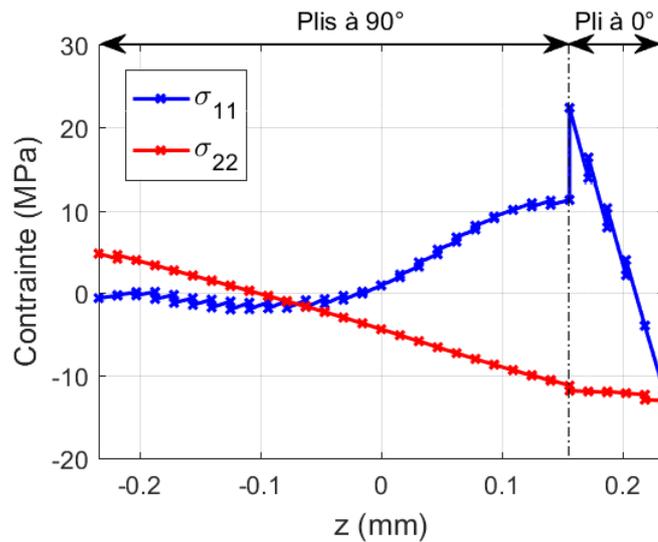


Fig. 7. Distribution des contraintes à travers l'épaisseur du bilame à l'état saturé.

### 3.5. Discussion

Les capacités maximales d'absorption des composites UD et du bilame montrent des différences significatives, qui peuvent être analysées au regard des champs de contraintes mécaniques prédits par le modèle hygro-mécanique. En effet, pour le biocomposite asymétrique, la majeure partie des plis est en compression dans la direction transverse aux fibres, entraînant une diminution du volume libre dans le matériau et donc à fortiori une diminution de la reprise en eau.

L'évolution de la courbure en fonction de la teneur en eau présente une zone de stabilisation pour un teneur supérieure à 8% alors que le gonflement d'un pli libre de contraintes continue d'augmenter pour une teneur en eau équivalente. Ce phénomène est par ailleurs observé sur des actionneurs bilames naturels [22].

Plusieurs explications peuvent être proposées. Tout d'abord, les valeurs des contraintes de traction transverses estimées au sein du bilame (environ 5 MPa) laissent penser que, en comparaison des propriétés transverses des plis à saturation et notamment leur contrainte à la rupture  $\sigma_T = 2,9 \pm 0,2$  MPa, des endommagements peuvent apparaître. Ces endommagements ont d'ailleurs pu être observés sur des actionneurs hygromorphes après un cycle de sorption/désorption avec des décohésions fibre/matrice et des décohésions internes aux faisceaux de fibres.

D'après Newman *et al.*, le gonflement des fibres induit des contraintes dans la matrice qui vont s'accommoder par déformation plastique [23].

Par ailleurs, une dégradation physico-chimique des fibres et des interfaces fibre/matrice peut apparaître avec le lessivage de polysaccharides [24]. Ces endommagements peuvent modifier le comportement de sorption des bilames.

De plus, les fibres de lin sont composées de polysaccharides, pectines et hémicelluloses notamment dont la Tg varie très fortement avec la teneur en eau. Le gonflement sera alors dicté par la déformation de ces polysaccharides.

Toutefois, un second cycle de sorption/désorption permet l'établissement d'un moment fléchissant conduisant à une courbure équivalente au premier cycle [10]. La question de l'irréversibilité des endommagements peut se poser. Almgren *et al.*, proposent que l'augmentation des contraintes radiales compressives appliquées à la fibre compensent la perte d'interactions hydrogène à l'interface fibre/matrice [25].

## 4. Conclusion

L'étude de la diffusion d'humidité dans des composites biosourcés (Polypropylène greffé par de l'anhydride maléique, renforcé par 60% de fibres de lin) avec différents empilements a permis de mettre en évidence un certain nombre de points intéressants. Les deux empilements testés sont un

composite UD [90<sub>6</sub>] et un composite assymétrique [0<sub>1</sub>,90<sub>5</sub>]. Premièrement, les cinétiques de diffusion présentent des différences significatives avec, en particulier, une capacité maximale d'absorption diminuée dans le cas du composite assymétrique. Une approche hygro-mécanique basée sur la théorie modifiée des stratifiés et sur la prise en compte de l'évolution simplifiée des propriétés hygro-élastiques avec la teneur en eau, ainsi que le gonflement hygroscopique des plis a été développée. A partir de ce modèle, la courbure induite par le gonflement différentiel des plis a pu être simulée ainsi que les états mécaniques internes. La courbure simulée présente des écarts avec la courbure mesurée expérimentalement. Ces écarts peuvent être associés aux hypothèses faites sur les conditions aux limites et sur un point que nous n'avons pas à ce jour élucidé, à savoir le fait que le composite continue de reprendre de l'eau alors que l'état de déformation se stabilise. Le champ de contraintes mécaniques dans l'épaisseur du stratifié assymétrique montre que la majeure partie des plis est soumise à un état de compression dans le sens transverse aux fibres. Ceci participe au transfert de charges hygroscopique entre fibre et matrice et donc à l'efficacité du bilame. De plus, cet état de compression entraîne une diminution du volume libre dans le matériau et donc une diminution de la capacité maximale d'absorption d'eau du bilame en comparaison du composite UD, pour lequel le champ de contrainte à l'état saturé, est nul.

Dans le travail présenté ici, le pli a été choisi comme milieu homogène équivalent ce qui présente quelques limites en termes d'analyses des résultats. Pour aller plus loin, il serait intéressant de descendre à une échelle inférieure et de prendre un volume élémentaire représentatif correspondant à une fibre de lin enrobée dans une matrice. Connaissant les propriétés hygro-élastiques de chacun des constituants (modules mécaniques, coefficient de dilatation hygroscopique, coefficient de diffusion), il serait alors intéressant de remonter aux propriétés homogènes équivalentes du composite pour mettre en avant des effets de couplage entre les fibres et la matrice lorsque ceux-ci sont soumis à des variations environnementales.

## Références

- [1] A. CELINO, S. FREOUR, F. JACQUEMIN, P. CASARI, « Characterization and modeling of the moisture diffusion behaviour of natural fibres », *J. Appl Polym Sci*, Vol. 130, pp. 297-306, 2013. doi: 10.1002/app.39148
- [2] T. STUART, RD. MCCALL, HSS. SHARMA, G. LYONS, « Modelling of wicking and moisture interactions of flax and viscose fibres ». *Carbohydr Polym*, Vol. 123, pp 359–68. doi:10.1016/j.carbpol.2015.01.053.
- [3] A. CELINO, S. FREOUR, F. JACQUEMIN, P. CASARI, «The hygroscopic behavior of plant fibers: a review». *Front Chem*, Vol. 1, pp 1-43, 2014. doi [10.3389/fchem.2013.00043](https://doi.org/10.3389/fchem.2013.00043).
- [4] A. LE DUIGOU, P. DAVIES, C. BALEY, «Seawater ageing of flax/poly(lactic acid) biocomposites». *Polym Degrad Stab*, Vol. 94, pp.1151-62, 2009. doi:10.1016/j.polymdegradstab.2009.03.025.
- [5] M. GIGLIOTTI, J. MOLIMARD, F. JACQUEMIN, A.VAUTRIN, . «On the nonlinear deformations of thin unsymmetric 0/90 composite plates under hygrothermal loads». *Compos Part A Appl Sci Manuf*, Vol. 37, pp.624–9, 2006. doi: 10.1016/j.compositesa.2005.05.003.
- [6] A. LE DUIGOU, M. CASTRO, «Moisture-induced self-shaping flax-reinforced polypropylene biocomposite actuator». *Ind Crops Prod*, Vol.71, pp.1-6, 2015.doi:10.1016/j.indcrop.2015.03.077.
- [7] A. LE DUIGOU, M. CASTRO, «Evaluation of force generation mechanisms in natural, passive hydraulic actuators». *Sci Rep*,;18105, 2016.
- [8] A. LE DUIGOU, M. CASTRO, R. BEVAN, N. MARTIN, «3D printing of wood fibre biocomposites: From mechanical to actuation functionality». *Mater Des*,Vol. 96, pp.106-14, 2016. doi:10.1016/j.matdes.2016.02.018.
- [9] A. BOURMAUD, C. MORVAN, A. BOUALI, V. PLACET, P. PERRE, C. BALEY, « Relationships between micro-fibrillar angle, mechanical properties and biochemical composition of flax fibers ». *Indus Crops and Prod*, Vol. 44, pp 343–351, 2013.
- [10] A. LE DUIGOU, M. CASTRO, « Hygromorph BioComposites : Effect of fibre content and interfacial strength on the actuation performances ». *Ind Crop Prod*, Vol. 99, pp. 142–149, 2017.
- [11] A. LE DUIGOU, P. DAVIES, C. BALEY, «Seawater ageing of flax/poly(lactic acid) biocomposites». *Polym Degrad Stab*, Vol. 94, pp.1151-62, 2009.
- [12] S. ALBEN, B. BALAKRISNAN, E. SMELA, « Edge Effects Determine the Direction of Bilayer Bending. *Nanoletter* », Vol. 11, pp 2280-2285, 2011.
- [13] M.W. HYER, « Calculation of the room-temperature shapes of unsymmetric laminates ». *J. Compos. Mater*, Vol. 15, pp. 296-310, 1981.

- [14] M. PERON, F. JACQUEMIN, P. CASARI, « Caractérisation thermomécanique et prédiction des contraintes résiduelles dans un stratifié composite thermoplastique durant le refroidissement ». *Comptes rendus des JNC20*, 28-30 juin 2017, Champs-sur-Marne.
- [15] H. OBEID « Durabilité de composites à matrice thermoplastique sous chargement hygro-mécanique : étude multi-physique et multi-échelle des relations microstructure – propriétés – états mécaniques ». Thèse de doctorat. Université de Nantes, 2016.
- [16] E.H .SAIDANE, D. SCIDA, M. ASSARAR, R. AYAD « Effects of manufacturing process and water ageing on the mechanical behaviour of two reinforced composites: Flax-fibres and glass-fibres ». 16th European Conference on Composite Materials, ECCM 2014.
- [17] J. CRANK, «The mathematics of diffusion» Clarendon Press, Oxford, 1975.
- [18] M. ASSARAR, D. SCIDA, A. EL MAHI, C. POILANE, R. AYAD, «Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: Flax fibres and glass fibres». *Mater Des*, Vol. 32, pp. 788-795, 2011.
- [19] M.F. PUCCI, P.J. LIOTTIER, D. SEVENO, C. FUENTES, A. VAN VURRE, S. DRAPIER, «Swelling of flax fibers: effect of thermal treatment on their dimensional stability». In Conference ECCM 17, 26-30 June, 2016.
- [20] T. JOFFRE, E.L.G. WERNERSSON, A. MIETTINEN, C.L. LUENGO HENDRIKS, E.K. GAMSTEDT. « Swelling of cellulose fibres in composite materials: Constraint effects of the surrounding matrix ». *Compos Sci Technol*, Vol. 74, pp 52-59, 2013.
- [21] K. KAWASAKI, Y. SEKITA, K. KANOU, «The extension of nylon 6 as a function of the extent and nature of sorbed water». *J Colloid Sci*, Vol. 17, pp. 865-871, 1962.
- [22] E. REYSSAT, L. MAHADEVAN, «Hygromorph: from pine cone to biomimetic bilayers». *J R Soc*, Vol. 6, pp. 951–957, 2009.
- [23] R.H. NEWMAN, « Auto-accelerative water damage in an epoxy composite reinforced with plain-weave flax fabric ». *Compos Part A Appl Sci Manuf*, Vol. 40, pp 1615-1620, 2009.
- [24] A. LE DUIGOU A, C BALEY, « In-situ evaluation of flax fibre degradation during water ageing ». *Ind Crops Prod*, Vol. 70, pp. 204-210 ,2015.
- [25] K.M. ALMGREN, E.K. GAMSTEDT, « Characterization of Interfacial Stress Transfer Ability by Dynamic Mechanical Analysis of Cellulose Fiber Based Composite Materials ». *Compos Interfaces*, Vol.17, pp 845-861, 2010.