HAL
open science

Microstructure et vieillissement hygrothermique de composites renforcés de fibres de lin unidirectionnelles

Michael Berges, Benoit Piezel, Véronique Person, Stéphane Corn, Romain Léger, Stéphane Fontaine, Patrick Ienny, Vincent Placet

To cite this version:

Michael Berges, Benoit Piezel, Véronique Person, Stéphane Corn, Romain Léger, et al.. Microstructure et vieillissement hygrothermique de composites renforcés de fibres de lin unidirectionnelles. Journées Nationales sur les Composites 2017, École des Ponts ParisTech (ENPC), Jun 2017, 77455 Champs-sur-Marne, France. hal-01621613

HAL Id: hal-01621613

https://hal.science/hal-01621613

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.

Microstructure et vieillissement hygrothermique de composites renforcés de fibres de lin unidirectionnelles

Microstructure and hygrothermal ageing of unidirectional flax fibres-reinforced composites

Michael Berges[1, 2,3], Benoit Piezel[1], Véronique Person[1], Stéphane Corn[2], Romain Léger[2], Stéphane Fontaine[1], Patrick Ienny[2], Vincent Placet[3]

1 : DRIVE EA1859
Univ. Bourgogne Franche-Comté
F-58000 Nevers, France
e-mail : michael.berges@u-bourgogne.fr

2 : C2MA
Mines d'Alès
F-30319 Alès, France
e-mail : patrick.ienny@mines-ales.fr

3 : FEMTO-ST UMR6174
Univ. Bourgogne Franche-Comté
F-25000 Besançon, France
e-mail : vincent.placet@univ-fcomte.fr

Résumé

La production actuelle de matériaux composites structuraux repose principalement sur des ressources fossiles non renouvelables. De nombreuses règlementations incitent aujourd'hui les industriels à s'orienter vers des solutions écoresponsables. Dans ce contexte, les fibres végétales apparaissent comme une alternative intéressante aux fibres synthétiques en raison de leurs bonnes propriétés mécaniques et de leur faible densité. En revanche, l'emploi de telles fibres reste limité pour des composites structuraux du fait de leur caractère hydrophile qui impacte la fabrication, la tenue en service ainsi que la durabilité. L'objectif de ce travail est d'étudier l'effet d'un vieillissement hygrothermique, consistant en une absorption suivie d'une désorption, sur les propriétés mécaniques d'un matériau composite lin/époxy. Parmi les paramètres de fabrication, l'influence du conditionnement des fibres et de la pression de thermocompression ont été étudiés. Les résultats de cette étude montrent l'importance de maîtriser les conditions de stockage des fibres afin de garantir un matériau reproductible pourvu de bonnes propriétés mécaniques. Une pression de fabrication de 3 bars a permis d'obtenir les propriétés optimales. L'absorption d'eau a induit une plastification du matériau et la désorption a montré la réversibilité des phénomènes de plastification, mais a également révélé des phénomènes d'endommagement irréversibles affectant les propriétés ultimes.

Abstract

The current production of structural composite materials relies mainly on non-renewable fossil resources. Many regulations encourage the industry to move towards eco-friendly solutions. Within that general background, vegetal fibers appear to be an interesting alternative to synthetic fibers due to their good mechanical properties and their low density. However, using these fibers for structural composites is still limited because of their hydrophilic behavior which impacts processing, in-service properties and durability. The aim of this work is to study the effect of hygrothermal ageing, based on a sorption-desorption sequence, on the mechanical properties of flax fibers reinforced epoxy laminates. Among the processing parameters, the influence of the fiber conditioning and the thermocompression pressure were studied. Results show that it is necessary to control the fibers conditioning in order to produce a reproducible material with good mechanical properties. Optimized mechanical properties were obtained with a 3 bar pressure. Water sorption induced a plasticization of the laminate and the desorption revealed the reversibility of these plasticization phenomena, but also highlighted irreversible damage phenomena which altered the ultimate properties.

Mots Clés : Lin-Epoxy, vieillissement hygrothermique, microstructure, procédé, thermocompression
Keywords : Flax-Epoxy, hygrothermal ageing, microstructure, process, thermocompression

1. Introduction

L'utilisation de fibres végétales dans les matériaux composites afin de remplacer les fibres synthétiques par des solutions alternatives plus respectueuses de l'environnement fait de plus en plus l'objet de recherche [1]. Elles sont prometteuses de par leurs propriétés mécaniques intéressantes et leur faible densité [2].

En revanche, les fibres naturelles sont naturellement hydrophiles [3]. Cela affecte notamment la mise en œuvre de telles fibres [4] et la durée de vie en service lorsque les composites qu'elles composent sont exposés à des sollicitations hygrothermiques [5].

Concernant la mise-en-œuvre, l'importance du conditionnement des fibres est parfois discutée dans la littérature, notamment lorsqu'il est question d'un séchage préalable des fibres pour éviter la présence d'eau dans le composite. Certains auteurs ont constaté une sensibilité de la teneur en eau dans la fibre sur l'adhésion fibre/matrice [6-7]. Par ailleurs, il a aussi été montré qu'un séchage excessif des fibres est susceptible de dégrader leurs propriétés mécaniques [7-8].

Pour les sollicitations hygrothermiques, les matériaux composites renforcés de fibres végétales sont sensibles à l'absorption d'eau car elle entraine une altération du comportement mécanique [9].

Cette étude a donc pour but de caractériser l'influence d'un vieillissement hygrothermique. Pour cela, la fabrication du matériau doit conduire à une bonne répétabilité de ses propriétés avant vieillissement et convenir à de telles sollicitations. Ces composites étant produits par thermocompression, l'influence de la pression de fabrication a été investiguée.

La pression peut avoir deux effets contradictoires. En effet, certains auteurs ont montré que l'augmentation de pression de 0,50 à 1,00 MPa peut conduire à diminuer le taux volumique de porosités de 2,42 % à 1,51 % et augmenter le taux volumique de fibres par compaction [10], résultant ainsi en une amélioration des propriétés mécaniques. Au-delà d'un certain seuil de pression, la compaction des fibres est maximale, ainsi une augmentation de pression chasse la résine, ce qui provoque l'augmentation des porosités [11-12]. Par exemple, pour un composite de jute, le taux maximum de fibres par compaction maximale de 46,8 % a été observé [12].

Dans la mesure où les porosités favorisent l'absorption d'eau dans le composite [13-15] et donc influent fortement sur la capacité de ces matériaux à se dégrader au cours de vieillissements hygrothermiques, il est donc primordial de déterminer une pression de thermocompression optimale pour atteindre des taux de porosités suffisamment faibles dans les stratifiés. Or, pour les matériaux composites renforcés de fibres de lin et pour ce procédé, les taux volumiques de porosités généralement rencontrés dans la littérature sont de l'ordre de 5 à 10 % [9,16].

Ce travail présente donc l'étude de l'influence du conditionnement des fibres avant mise-en-œuvre et de la pression de fabrication sur les propriétés mécaniques et la microstructure du matériau pour ensuite se concentrer sur la caractérisation du comportement mécanique sous sollicitations hygrothermiques.

Cette étude a été réalisée dans le cadre d'une collaboration entre trois laboratoires (DRIVE, C2MA et FEMTO-ST) qui sont membres du consortium BioLam (Biobased Laminates Research Consortium).

2. Matériaux et Méthodes

2.1 Matériaux

Les fibres végétales utilisées pour le renfort des composites de cette étude sont organisées sous forme de renforts unidirectionnels purs (Flaxtape Lineo, 110 $g.m^{-2}$). La résine choisie est une époxy de la société Sicomin (SR 8500/SZ 8525, ratio massique résine/durcisseur de 4 : 1).

L'influence de l'état hygroscopique initial des fibres a été étudiée. Certains lots de renforts ont été préconditionnés à 23 ± 1 °C et 50 ± 1 % d'humidité relative, pendant au moins 7 jours avant mise-en-œuvre. D'autres lots ont été utilisés directement après un stockage à hygrométrie et température non contrôlées. L'importance de ce conditionnement est discutée dans les résultats.

2.2 Fabrication

Après avoir étés imprégnés manuellement, les plis unidirectionnels, au nombre de 20, sont ensuite thermocompressés selon le cycle de cuisson ci-dessous (Fig.1) pour obtenir des plaques composites de 400 mm x 400 mm dont l'épaisseur dépend de la pression utilisée.

Une température de cuisson de 80 °C a été choisie pour ne pas dégrader les fibres et se conformer aux données du fournisseur de résine qui préconise, à cette température, une durée de cuisson de 1 heure. La pression a été appliquée au début du palier à 40 °C et maintenue jusqu'au refroidissement complet. Trois pressions ont été utilisées : 1 bar, 3 bars et 5 bars. L'influence de cette pression est discutée dans les résultats.

Les plaques ainsi produites ont subi une post-cuisson de 2 h à 80 °C.

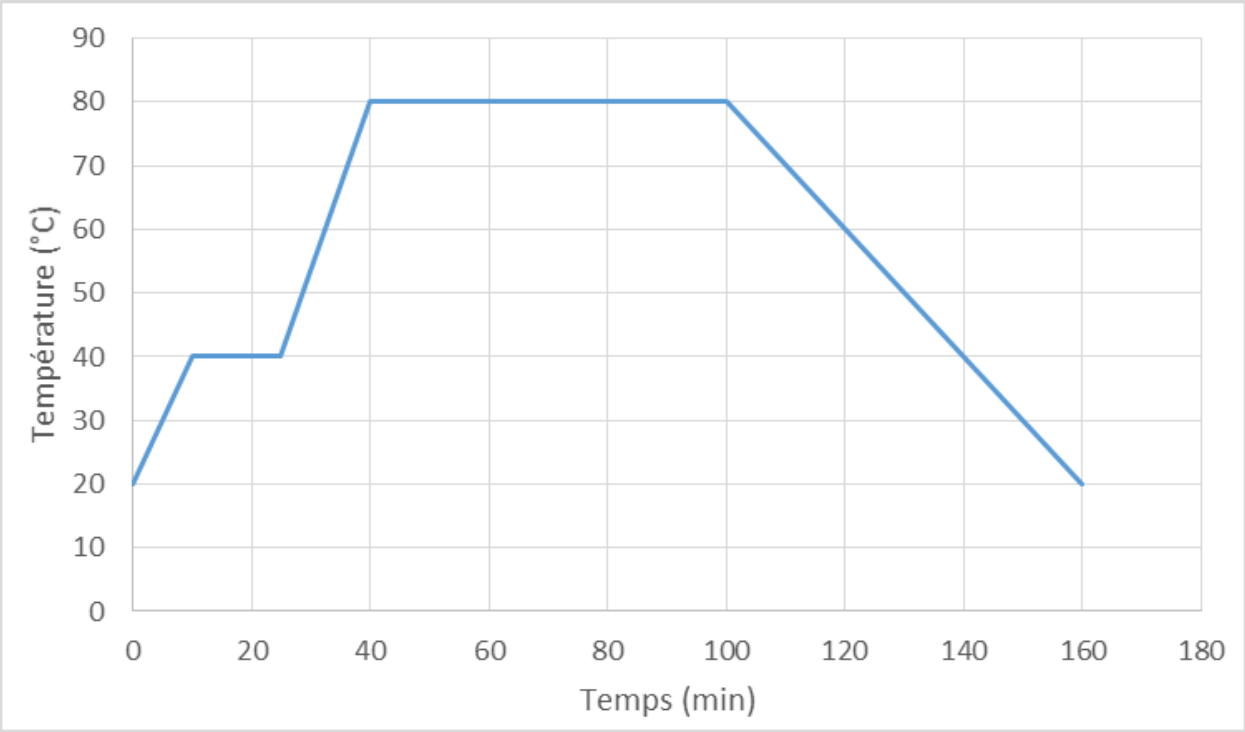

Fig. 1. Cycle de cuisson

Les taux volumiques de fibre, de résine et de porosité sont déterminés par la méthode inspirée de la norme ASTM D 3171 - 99.

2.3 Préparation des échantillons

Des échantillons de 250 mm de longueur et de 25 mm de largeur ont été découpés à la scie circulaire sous lubrification humide (géométrie 4 de la norme ISO 527). Les éprouvettes ont été séchées dans du papier absorbant immédiatement après découpe pour limiter le temps d'exposition à l'eau. Ces échantillons ont ensuite été conditionnés à 23 °C, 50 % HR pendant 7 jours avant les essais.

Les échantillons sont préparés de telle manière à ce que la direction des essais mécaniques coïncide avec celui des renforts (0 °). Les éprouvettes n'ont pas été équipées de talons.

2.4 Vieillissement des éprouvettes

Avant vieillissement, toutes les éprouvettes ont été stabilisées pendant 7 jours à 23 °C, 50 % HR. Ceci constitue notre référence. Le vieillissement réalisé consiste en une phase d'absorption et une phase de désorption. L'absorption a été pratiquée dans une enceinte climatique WEISS WKL 34/+10 à 70 °C, sous humidité relative de 90 %, jusqu'à saturation. La désorption a été réalisée dans une

étuve Memmert à 70 °C, sous humidité relative de 5 % jusqu'à désorption complète, appelée « état sec ».

Il est important de noter que la température est suffisamment éloignée de la température de transition vitreuse (aux alentours de 110 °C) et de la température de vaporisation de l'eau présente dans les fibres afin d'éviter tout effet parasite ou changement dans le comportement du matériau.

2.5 Essais mécaniques

Les essais de traction quasi statique ont été menés selon la norme ISO 527-4, sur une machine MTS Criterion C45 équipée d'un capteur de force de 100 kN et d'un extensomètre à couteaux (longueur de référence 50 mm). La vitesse de sollicitation a été fixée à 1 mm.min^{-1}. Les résultats présentés sont des moyennes de lots de 4 éprouvettes.

L'allure de la courbe de traction d'un composite à fibres de lin est constituée de plusieurs parties linéaires [9,17]. De ce fait, les auteurs s'accordent pour définir deux modules élastiques E_1 et E_2, qui correspondent aux pentes des deux parties linéaires distinctes observées en rouge et en vert sur le graphique (Fig. 2) [18].

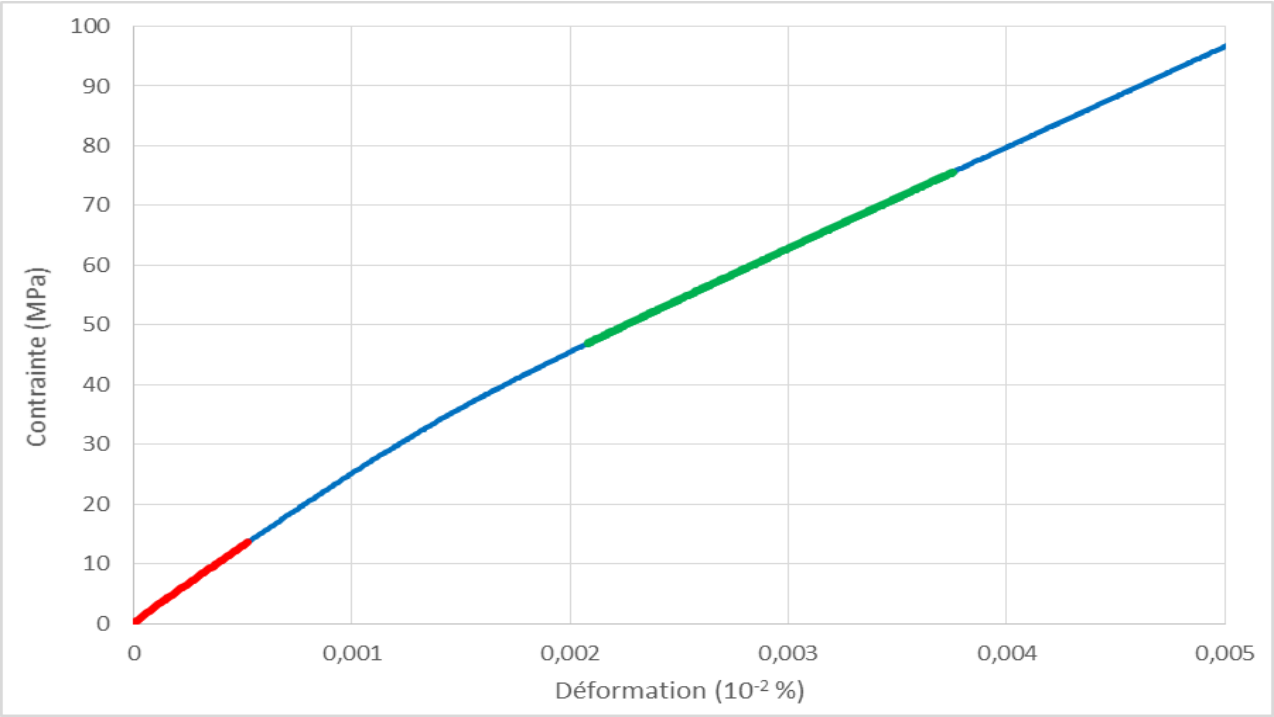

Fig. 2. Courbe partielle de traction classique pour un composite lin/époxy avec les zones de mesure du module E1 (rouge) et E2 (vert)

Des analyses modales en vibrations libres (par réponse impulsionnelle) ont également été menées sur les échantillons avant et après vieillissement, afin de permettre un suivi non-destructif de l'évolution du module d'Young et du coefficient d'amortissement au cours de l'absorption et de la désorption d'eau en conditions hygrothermiques. Ces essais sont effectués à l'aide d'un marteau de choc, d'un accéléromètre et de masselottes métalliques servant à abaisser la fréquence de résonance du premier mode de traction-compression dans la plage de mesure du système (Fig. 3). On peut ensuite lier la fréquence de résonance mesurée pour ce mode au module d'Young selon l'équation (Eq. 1).

$$E = \rho.\pi^2.L^2.(\frac{f}{\beta})^2 \qquad \text{(Eq. 1)}$$

Avec E : module d'Young en GPa ; ρ : masse volumique en kg.m^{-3} ; L : longueur vibrante en mm ; f : fréquence propre en Hz ; β : coefficient adimensionnel solution de $\beta.\tan(\beta) = \frac{m}{M}$ avec m la masse de l'échantillon seul et M la masse des masselottes.

FIG. 3 : Photo du montage de l'analyse vibratoire

2.6 Observations microscopiques

Des observations microscopiques ont été réalisées sur des échantillons non sollicités mécaniquement, afin d'inspecter la microstructure des matériaux. Ces clichés ont permis d'observer les porosités présentes dans les matériaux issus de fabrication aux différentes pressions. Des échantillons de 20 x 20 ont été découpés à la scie circulaire, lubrifiée à l'eau, puis séchés avec du papier absorbant pour éviter toute absorption. Après 7 jours de conditionnement à 23 °C, 50 % HR, les échantillons ont été enrobés d'une résine EpoFix de chez Struers, puis polis. Les observations ont été réalisées à l'aide d'un microscope optique Nikon Eclipse LV150.

3. Résultats et discussion

3.1 Influence du conditionnement des fibres avant mise-en-œuvre

Les essais mécaniques réalisés (Tab. 1) révèlent que le conditionnement a une influence notoire sur le module d'Young mesuré en traction monotone. On observe en effet une hausse du module E_1 de 5,5 %, du module E_2 de 18,5 % et de la contrainte à rupture de 7 % lorsque l'on utilise des renforts préconditionnés. Ces changements de propriétés mécaniques sont attribués à un changement de teneur en eau des fibres, qui modifie leurs propriétés mécaniques [6-7].

Préconditionnement	**Sans**	**Avec**
E_1 (GPa)	30,72 ± 1,48	32,41 ± 2,12
E_2 (GPa)	19,22 ± 1,05	22,78 ± 1,88
Contrainte à rupture (MPa)	345,2 ± 18,2	370,5 ± 20,6

Tab. 1. Propriétés mécaniques pour les plaques produites sous 3 bars en fonction du conditionnement des fibres

Aussi, en raison de l'effet non négligeable des conditions de stockage hygrothermiques sur les propriétés des fibres et des composites, il a été choisi d'avoir recours à un préconditionnement des renforts avant mise en œuvre afin d'obtenir des propriétés mécaniques répétables. L'ensemble des résultats présentés par la suite sont issus d'échantillons dont les fibres auront subi ce préconditionnement avant thermocompression.

3.2 Influence de la pression sur la microstructure et les propriétés mécaniques

La détermination des taux volumiques (Tab. 2) permet de montrer l'influence de la pression de thermocompression sur la qualité des plaques obtenues. On constate tout d'abord que les taux de porosités sont faibles au regard des valeurs citées dans la littérature pour de tels matériaux. Par ailleurs, des taux de porosités faibles et équivalents sont obtenus pour les pressions de 1 bar et 3 bars. Le passage à une fabrication sous 5 bars provoque une chute de la qualité des plaques produite avec une augmentation de 24 % de la porosité. On constate aussi un bond de l'écart type de l'estimation du taux de porosité sous 5 bars. Cette observation est confirmée sur les clichés au microscope (Fig. 4) sur lesquels on constate une nette dégradation de la microstructure pour cette pression. Cette dégradation est relative à la compaction forcée des plis entre eux à laquelle est associée une augmentation du taux de porosités inhérente à une moins bonne imprégnation [11-12]**.**

Sur le tableau 2 (Tab. 2), on constate que le recours à plus de pression de thermocompression s'accompagne logiquement de l'augmentation du taux volumique de fibres. Cependant, le module E_2 semble atteindre un maximum pour la pression de 3 bars, tandis que le module E_1 augmente de manière peu significative. La contrainte à la rupture ne change pas significativement entre 3 et 5 bars de pression de fabrication. Au-delà de 3 bars se produisent les effets antagonistes d'augmentation du taux volumique de fibre et de dégradation des fibres par compaction forcée.

Pression	**1 bar**	**3 bars**	**5 bars**
Taux vol. de fibres (%)	37,9 ± 0,9	44,9 ± 1,7	51,3 ± 1,9
Taux vol. de résine (%)	59,7 ± 1,1	52,7 ± 1,3	45,7 ± 2,9
Taux vol. de porosités (%)	2,4 ± 0,2	2,5 ± 0,4	3,1 ± 1,0
Module E_1 (GPa)	27,91 ± 1,11	32,41 ± 2,12	34,32 ± 1,51
Module E_2 (GPa)	18,95 ± 0,26	22,78 ± 1,88	22,79 ± 0,84
Contrainte à rupture (MPa)	314,8 ± 15,0	370,5 ± 20,6	382,6 ± 18,6

Tab. 2. Propriétés en fonction de la pression de fabrication

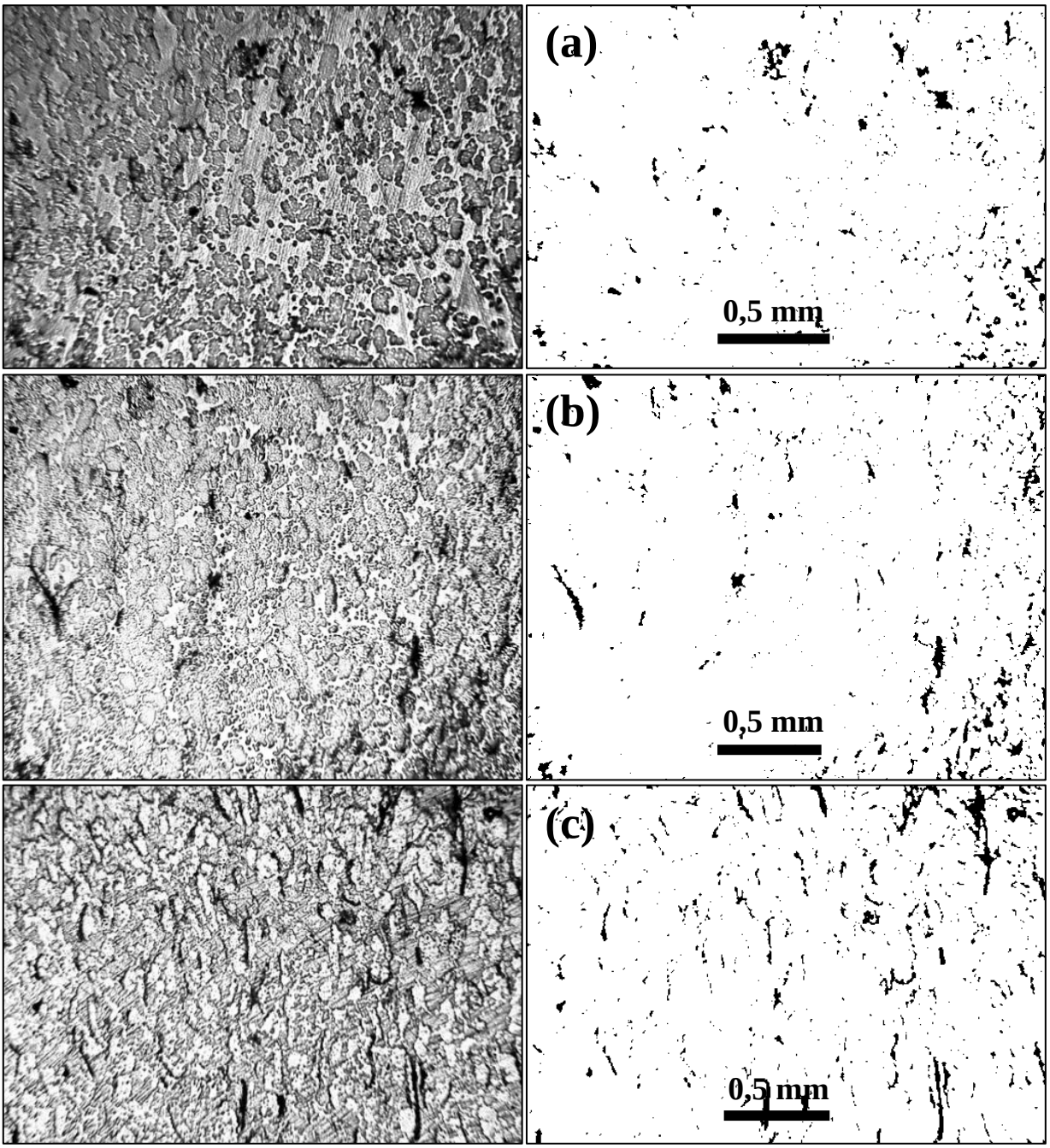

Fig. 4. Images micrographiques et seuillage associé : observation des porosités des matériaux fabriqués sous (a) 1 bar ; (b) 3 bars ; (c) 5 bars

Ainsi, de bonnes propriétés sont obtenues à 3 et à 5 bars et une porosité faible est obtenue à 1 et 3 bars. La pression de 3 bars est donc un bon compromis pour ce type de renfort dans nos conditions de fabrication. De ce fait, l'étude en vieillissement a été réalisée sur des échantillons fabriqués sous 3 bars.

3.3 Absorption et Désorption Hygrothermique

La courbe d'absorption (Fig. 5) suit une loi de Fick 1D avec un coefficient de diffusion D de 4,18. 10^{-6} mm². s^{-1}, en accord avec les résultats de la littérature [19-20]. La saturation est atteinte à partir de 225 heures pour un gain de masse de 4 %.

La courbe de désorption atteint l'équilibre à partir de 400 heures pour une perte de masse de 2 % par rapport à l'état initial.

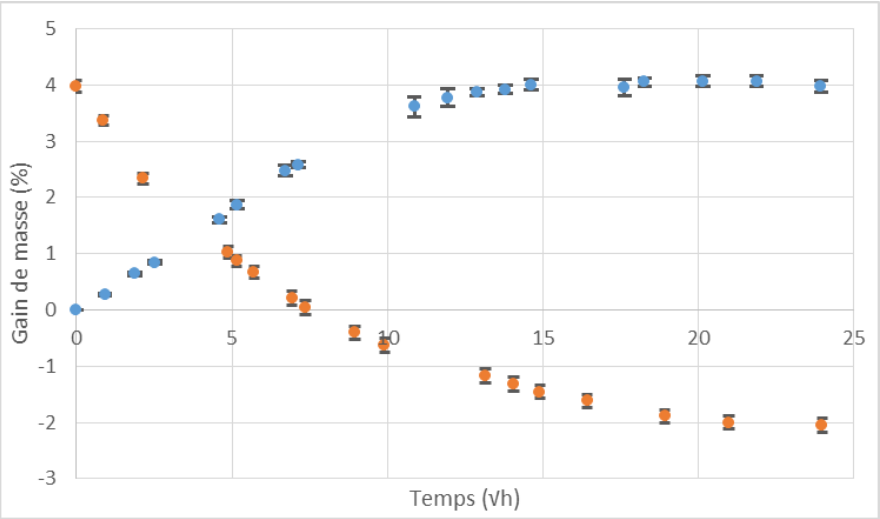

Fig. 5. Courbe d'absorption/désorption à 70 °C
absorption : 90 % HR (bleu) ; désorption : 5 % HR (orange)

Sur le tableau (Tab. 3), les modules diminuent à saturation par rapport à l'état initial, en revanche l'allongement à rupture et l'amortissement des vibrations augmentent, ce qui est cohérent avec les résultats de la littérature [9]. Ces résultats traduisent la plastification du matériau sous l'action de l'eau absorbée. En revanche, la contrainte à rupture ne varie pas de manière significative. Ces observations sont en accord avec de précédents travaux [9]. Ce maintien de la contrainte à rupture malgré la plastification du matériau est attribué au gonflement des fibres dans la résine qui provoque une amélioration de la cohésion fibre-matrice [21]. Il pourrait être intéressant d'étudier un vieillissement dans une atmosphère à humidité plus faible pour découpler les effets de la plastification et du gonflement des fibres dans la résine.

À l'état sec, le module vibratoire et l'amortissement des vibrations sont équivalents à ceux obtenus avant vieillissement, ce qui montre une réversibilité de la plastification des fibres et de la résine. Cependant, la contrainte à rupture diminue drastiquement du fait d'endommagements irréversibles des fibres et de l'interface fibre-matrice par séchage [7] pouvant provenir soit de l'absorption soit de la désorption [22]. En effet, à l'absorption, un gonflement différentiel apparait, puisque les fibres seules absorbent plus d'eau que la résine seules et enflent davantage. Ainsi, des fissures peuvent apparaitre à l'interface entre les deux. À la désorption, les fibres perdent l'eau qu'elles contiennent et perdent plus du volume que la résine, ce qui peut entraîner une décohésion fibres - matrice. Il serait nécessaire d'analyser des images au microscope électronique à balayage pour confirmer ces hypothèses.

	Avant sorption	**À saturation**	**À l'état sec**
Module E_1 (GPa)	30,95 ± 0,68	23,60 ± 0,76	-
Module E_2 (GPa)	19,21 ± 0,43	14,41 ± 0,81	-
Module E par analyse vibratoire (GPa)	30,2 ± 1,6	25,1 ± 1,4	30,7 ± 0,8
Contrainte à rupture (MPa)	316,5 ± 21,3	300,1 ± 8,7	236,4 ± 18,0
Allongement à rupture (%)	1,55 ± 0,06	1,82 ± 0,05	-
Amortissement (sans unité)	0,886 ± 0,139	1,365 ± 0,060	0,869 ± 0,029

Tab. 3. Propriétés mécaniques aux différents stades de la sorption

4. Conclusions

L'objectif de cette étude est l'optimisation de la fabrication d'un matériau composite renforcé de fibres de lin et l'évaluation de l'effet d'un vieillissement hygrothermique sur ses propriétés mécaniques. Dans un premier temps, cette étude se concentre sur l'influence du conditionnement des fibres et de la pression de thermocompression sur les propriétés mécaniques et la microstructure de composites renforcés de tissus de lin unidirectionnels. Dans un second temps, cette étude s'est portée sur un vieillissement hygrothermique à 70 °C constitué d'une phase d'absorption jusqu'à saturation à 90 % HR et d'une phase de désorption jusqu'à désorption complète à 5 % HR.

Les résultats mettent en évidence l'importance de conditionner les fibres afin de garantir des propriétés mécaniques élevées et reproductibles. De plus, la pression de fabrication permet d'augmenter le taux volumique de fibres, mais un seuil des propriétés mécaniques apparaît pour des pressions de 3 à 5 bars. En effet, les propriétés mécaniques à 3 et 5 bars sont équivalentes et plus élevées qu'à 1 bar, mais le taux de porosité le plus faible est obtenu à 1 et 3 bars. Le choix de la pression pour l'étude du vieillissement s'est donc porté sur une pression de 3 bars.

Le vieillissement met en évidence plusieurs phénomènes. L'absorption d'eau diminue largement le module d'Young et augmente l'allongement à rupture et le coefficient d'amortissement des vibrations. Ces changements sont liés à la plastification du matériau sous l'effet de l'eau absorbée. La contrainte à rupture ne varie pas significativement du fait du gonflement des fibres dans la résine qui améliore l'adhésion fibre-matrice. La désorption d'eau entraîne une diminution importante de la contrainte à rupture alors que le module d'Young et l'amortissement des vibrations retrouvent les valeurs initiales. Ainsi, les phénomènes de plastification sont réversibles, mais des endommagements irréversibles apparaissent au cours du vieillissement.

Cette étude sera poursuivie par un vieillissement hygrothermique dans les mêmes conditions de température et d'hygrométrie selon douze cycles, avec pour objectif de modéliser l'évolution de la microstructure au cours de ce vieillissement.

Références

[1] M. JOHN, S. THOMAS, "Biofibres and biocomposites," *Carbohydr. Polym.*, vol. 71, no. 3, pp. 343–364, 2008.

[2] I. Verpoest, "A general introduction to composites, highlighting the advantages of flax and hemp composites," *Reux Verpoest*, vol. 2012, pp. 15–37.

[3] S. Alix, E. Philippe, A. Bessadok, L. Lebrun, C. Morvan, S. Marais, "Effect of chemical treatments on water sorption and mechanical properties of flax fibres," *Bioresour. Technol.*, vol. 100, no. 20, pp. 4742–4749, 2009.

[4] K. Van de Velde, P. Kiekens, "Thermoplastic pultrusion of natural fibre reinforced composites," *Compos. Struct.*, vol. 54, no. 2–3, pp. 355–360, 2001.

[5] J. W. S. Hearle, "The fine structure of fibers and crystalline polymers. III. Interpretation of the mechanical properties of fibers," *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 7, pp. 1207–1223, 1963.

[6] A. K. Bledzki, A. Al-Mamun, V. Gutwski, "The effects of acetylation on properties of flax fibre and its polypropylene composites The effects of acetylation on properties of flax fibre and its polypropylene composites," *eXPRESS Polym. Lett.*, no. January, 2008.

[7] B. Masseteau, F. Michaud, M. Irle, A. Roy, and G. Alise, "An evaluation of the effects of moisture content on the modulus of elasticity of a unidirectional flax fiber composite," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 60, pp. 32–37, 2014.

[8] A. le Duigou, A. Bourmaud, E. Balnois, P. Davies, and C. Baley, "Improving the interfacial properties between flax fibres and PLLA by a water fibre treatment and drying cycle," *Ind. Crops Prod.*, vol. 39, pp. 31–39, 2012.

[9] M. Berges, R. Léger, V. Placet, V. Person, S. Corn, X. Gabrion, J. Rousseau, E. Ramasso, P. Ienny, and S. Fontaine, "Influence of moisture uptake on the static , cyclic and dynamic behaviour of unidirectional flax fibre-reinforced epoxy laminates," vol. 88, pp. 165–177, 2016.

[10] Y. Li, Q. Li, and H. Ma, "The voids formation mechanisms and their effects on the mechanical properties of flax fiber reinforced epoxy composites," *Compos. Part a*, vol. 72, pp. 40–48, 2015.

[11] B. Madsen, P. Hoffmeyer, and H. Liholt, "Hemp yarn reinforced composites - II. Tensile properties," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 30, no. 10, pp. 2204–2215, 2007.

[12] D. U. Shah, P. J. Schubel, P. Licence, and M. J. Clifford, "Determining the minimum, critical and maximum fibre content for twisted yarn reinforced plant fibre composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 72, no. 15, pp. 1909–1917, 2012.

[13] Y. Ledru, "Etude de la Porosite Dans Les Materiaux Composites Stratifies Aeronautiques," 2009.

[14] Q. Lin, X. Zhou, and G. Dai, "Effect of hydrothermal environment on moisture absorption and mechanical properties of wood flour–filled polypropylene composites," *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 85, no. 14, pp. 2824–2832, 2002.

[15] S. Barsberg and L. G. Thygesen, "Nonequilibrium Phenomena Influencing the Wetting Behavior of Plant Fibers," *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 67, pp. 59–67, 2001.

[16] J. Meredith, S. R. Coles, R. Powe, E. Collings, S. Cozien-Cazuc, B. Weager, J. Müssig, and K. Kirwan, "On the static and dynamic properties of flax and Cordenka epoxy composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 80, pp. 31–38, 2013.

[17] K. Charlet, "Contribution à l'étude de composites unidirectionnels renforcés par des fibres de lin : relation entre la microstructure de la fibre et ses propriétés mécaniques," 2008.

[18] F. Bensadoun, K. A. M. Vallons, L. B. Lessard, I. Verpoest, and A. W. Van Vuure, "Fatigue behaviour assessment of flax – epoxy composites," *Compos. Part A*, vol. 82, pp. 253–266, 2016.

[19] D. Scida, M. Assarar, C. Poilâne, and R. Ayad, "Influence of hygrothermal ageing on the damage mechanisms of flax-fibre reinforced epoxy composite," *Compos. Part B Eng.*, vol. 48, pp. 51–58, 2013.

[20] Y. Li and B. Xue, "Hydrothermal ageing mechanisms of unidirectional flax fabric reinforced epoxy composites," *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 126, pp. 144–158, 2016.

[21] E. Munoz and J. A. Garcia-Manrique, "Water absorption behaviour and its effect on the mechanical properties of flax fibre reinforced bioepoxy composites," *Int. J. Polym. Sci.*, vol. 2015, pp. 16–18, 2015.

[22] J. Gassan and A. K. Bledzki, "Effect of cyclic moisture absorption desorption on the mechanical properties of silanized jute-epoxy composites," *Polym. Compos.*, vol. 20, no. 4, pp. 604–611, 1999.