

# **RHEOLOGICAL PROPERTIES OF MOLTEN NATURAL FIBRE-POLYMER COMPOSITE: CASES OF FLAX AND TENCEL<sup>®</sup>**

*A.Abdennadher, Michel Vincent, Tatiana Budtova. Centre de Mise en Forme des Matériaux (CEMEF), MINES ParisTech, UMR CNRS 7635, BP 207, Sophia Antipolis, France. Telephone: (+33) 4 93 9 5 75 86.*

*E-mail addresses: ahmed.abdennadher@mines-paristech.fr, michel.vincent@mines-paristech.fr, tatiana.budtova@mines-paristech.fr*

**Key words: Rheology, Natural fibres, Microstructure, flexibility, Tencel<sup>®</sup> and flax**

## **1 INTRODUCTION**

Reinforcing thermoplastic with short glass fibres is currently used to improve the mechanical properties of injection moulding parts. Recently the interest for replacing glass by natural fibres has grown. The reasons are not only because natural fibres are renewable resources but also because they are cheaper and lighter than glass fibres. However, the natural fibres microstructure is still much more complex. Generally, natural fibres have lower stiffness and brittleness than glass fibres and are either flexible or rigid. This depends on their organizations which can be as rigid bundles or flexible individual filaments. During processing, the molten composite flowing causes translation, rotation, bending and even breaking the fibres. Hence the natural fibres aspect ratio (length/diameter) varies by the dissociation of bundles or the fibre rupture in length. This affects the microstructural characteristics by changing the flow field, the interactions between fibre and matrix and within fibres, which influences the molten composite viscosity and the final mechanical properties after forming. Therefore, the rheological properties of molten natural-fibre polymer have to be cleared up. The objective of the work is to link fibre length and concentration, fibre diameter and fibre flexibility with rheological properties.

## **2 MATERIALS AND METHODS**

### **2.1 Matrix**

The polypropylene used as composite matrix is a homopolymer polypropylene PPH9020 provided by Total Petrochemical, with 165°C as melting point and 25 g/10 min as melt-flow index.

### **2.2 Fibres**

Two types of fibres were used. The first one is the flax fibres kindly provided by Dehondt<sup>®</sup>. These fibres appear as a mix of rigid bundles and flexible elementary fibres. The elementary fibres diameter is around 10 µm. The initial average length fibre is around 450 µm and the initial average diameter is around 40 µm. The second type is the Tencel<sup>®</sup> fibre. It is a man-made fibres kindly provided by Lenzing<sup>®</sup>. Tencel<sup>®</sup> fibres are individual flexible fibres with 10 µm as diameter. The initial length average of Tencel<sup>®</sup> as delivered is around 300 µm.

### **2.3 Composite compounding**

Composites with 5, 10, 20 and 30 wt % were realized in a twin screw extruder. The extruder was Clextral BC21 with 21 mm as centreline distance and 900 mm as screw length. The global flow rate was 7 kg/h and the screws speed was 200 RPM. The compounding temperature was between 180 °C and 190 °C.

### **2.4 Size fibre measurement**

Fibres size was determined by optical microscopy in transmission and image treatment software. For the fibres in compounds, the matrix (polypropylene) had to be dissolved to bring back the fibres

before measurement. The solvent was Decalin<sup>®</sup> and the dissolution temperature was 170 °C. This method was already used by A. LeDuc and *al.* [1].

## 2.5 Rheology experiments

Rheological measurements were performed in small amplitude oscillatory shear on a parallel plate rheometer (Anton Paar), using discs of 25 mm diameter and 1 mm thickness. Frequency sweep tests were performed from 100 to 0.1 rad/s. The strain was fixed at 1 %.

## 3 RESULTS AND DISCUSSION

### 3.1 Fibre size analysis

As mentioned before flax fibres are a mix of bundles and elementary fibres. During processing, the length and the diameter can change under shearing. Tencel<sup>®</sup> case is simpler because the diameter is homogenous and the only variable is the length. A statistical analysis was carried out to determine the distribution of size before and after compounding for each composite concentration. Fig.1 presents the evolution of the aspect ratio (L/D) with fibre content for Tencel<sup>®</sup> and flax fibres. The aspect ratio decreased from 30 as delivered to 20 at 30 wt % fibre content for Tencel<sup>®</sup>, whereas for flax, it was still nearly stable with concentration. It is around 15. The reason is that compounding has not only broken flax fibre in length but also in diameter. But Tencel<sup>®</sup> aspect ratio is still even higher than flax.

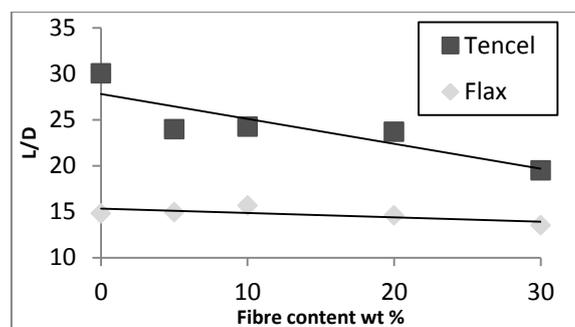


Figure 1. Evolution of average aspect ratio of Tencel<sup>®</sup> and flax with concentration

### 3.2 Dynamic rheology

Fig. 2 and 3 shows respectively complex viscosity and storage modulus as a function of frequency, at 190 °C for PP/flax composites. The fibre content varies from 5 wt % to 30 wt %. At high frequency, a classical shear thinning behaviour is observed, but at low frequency, the Newtonian plateau disappears when adding fibres, and the complex viscosity increases when decreasing frequency. In parallel, storage modulus shows a plateau at low frequency and high concentration. These phenomena can be explained by fibres interaction leading to a network structure occurring when the concentrated regime is reached. The theoretical fibre volume fraction corresponding to the beginning of this regime is equal to  $(L/D)^{-1}$  [2]. According to the results of size distribution, it turned out that the concentrated regime can be reached at a content fibre around 10 wt % for flax and 5 wt % for Tencel<sup>®</sup>. This can be confirmed by the PP/flax 10 wt % complex viscosity and storage modulus (fig. 4 and 5)

The complex viscosity curves were fitted by a Carreau-Yasuda law with yield stress (2) [3].

$$\eta(\omega) = \frac{\sigma_0}{\omega} + \eta_0 [1 + (\lambda\omega)^a]^{-\frac{m-1}{a}} \quad (2)$$

Where  $\sigma_0$  is the yield stress,  $\eta_0$  is the zero shear viscosity,  $\lambda$  is the time constant,  $a$  is the Yasuda parameter and  $m$  is the dimensionless power law index. These five parameters were adjusted for obtaining the best fit with the experimental data.

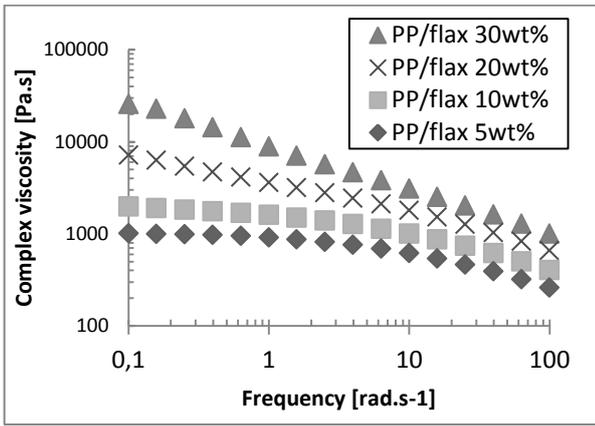


Figure 2. Complex viscosity curves of PP/flax for different fibre contents, at 190 °C and 1 % strain

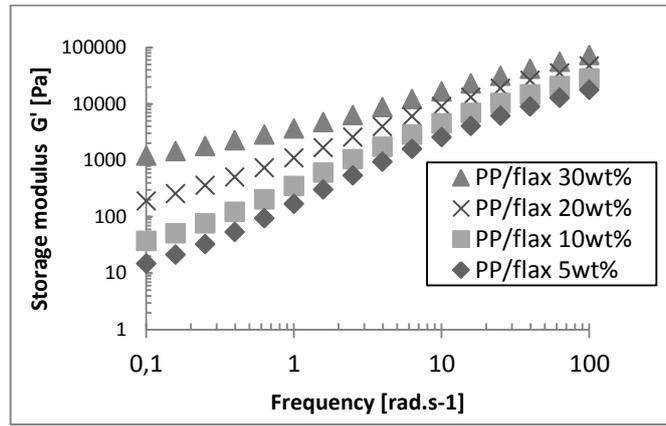


Figure 3. Storage modulus curves of PP/flax for different fibre contents, at 190 °C and 1 % strain

Fig. 4 demonstrates that the higher is the concentration the higher is the yield stress. The PP/Tencel<sup>®</sup> yield stress is higher than PP/flax yield stress and the difference increases with fibre concentration.

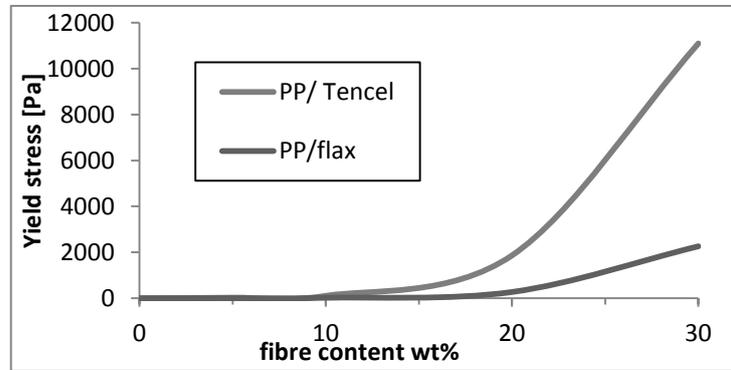


Figure 4. Yield stress evolution with fibre content for PP/flax, zero fibre content corresponds to the neat polypropylene

Fig. 5 shows a comparison of complex viscosity between PP/Tencel<sup>®</sup> and PP/flax, using the same temperature 190 °C and the fibre content 10 wt %. The PP/Tencel<sup>®</sup> viscosity is higher than that of PP/flax and the “yield stress behaviour” is more pronounced for PP/Tencel<sup>®</sup>. The reason is the fibre flexibility difference. In order to understand the role of fibre flexibility on the rheological behaviour of fibre composite, Switzer and al. [4] defined a criterion of flexibility (3). Keshtkar and al. applied this criterion to synthetic fibres and silicone oil suspensions [3].

$$F = \frac{64}{\pi} \left(\frac{L}{D}\right)^4 \frac{\eta_m \dot{\gamma}}{E_y} \quad (3)$$

Where  $L$  is the fibre length;  $D$  is the fibre diameter,  $\eta_m$  is the matrix viscosity,  $\dot{\gamma}$  is the shear rate and  $E_y$  is the fibre Young modulus. This criterion depends on the intrinsic fibre stiffness, aspect ratio and the stress imposed on the fibres. When  $F$  is large, fibres behave like completely flexible threads; whereas when  $F$  is small, fibres behave like rigid rods and keep their straight shape under flow. The flexibility characteristics of flax and Tencel<sup>®</sup> are presented in table 1. Because of using the same matrix and rheological conditions, the flexibility criterion was divided by  $\eta_m \dot{\gamma}$ . The reduced flexibility criterion  $F/(\eta_m * \dot{\gamma})$  of Tencel<sup>®</sup> seems at least ten times higher than flax. So we can conclude that the higher the fibre flexibility the higher the composite viscosity. This can explain the difference seen before in term of yield stress between PP/flax and PP/Tencel<sup>®</sup> composites.

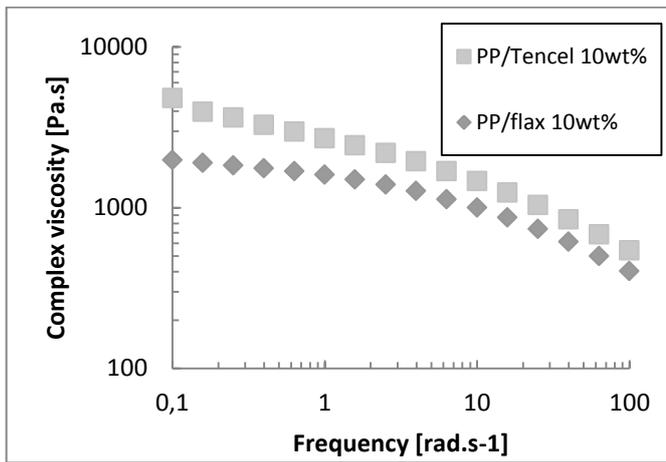


Figure 5. Complex viscosity curves of PP/Tencel<sup>®</sup> 10 wt % and PP/flax 10 wt % at 190 °C and 1 % strain

	E(GPa)	L/D	$F/(\eta_m * \dot{\gamma})$
Tencel <sup>®</sup>	13-30 [1]	24	11 059- 25 521
flax	50-70 [1]	16	936 -1 310

Table 1. Flexibility characteristics of Tencel<sup>®</sup> and flax fibres

#### 4 CONCLUSIONS

The size analysis distribution was performed for two natural fibres types (flax and Tencel<sup>®</sup>) before and after compounding for several fibres contents (5, 10 , 20 and 30 wt %). Flax fibre is a mix of rigid bundles and individual flexible filaments. Tencel<sup>®</sup> fibres are entirely individual flexible filaments. The flax aspect ratio was still almost constant with concentration (around 15) whereas Tencel<sup>®</sup> fibre aspect ratio decreases with concentration from 30 as delivered to 20 for 30 wt %. Dynamic rheology has been dealing with two effects: concentration and flexibility. When fibre content increases, molten composites behave as yield stress shear thinning fluid. By using Carreau-Yasuda law with yield stress, Tencel<sup>®</sup> composites exhibit a higher yield stress than flax composites, for the same concentration. These were explained by the second effect which is the fibre flexibility. It was demonstrated by using the flexibility criterion that Tencel<sup>®</sup> is more flexible than flax, which allowed concluding that increasing fibre flexibility leads to viscosity increase.

#### 5 ACKNOWLEDGEMENTS

This study has been carried out in the frame of the Industrial Chair ‘‘Bioplastics’’ supported by Mines ParisTech, Arkema, L’Oréal, Nestlé, PSA and Schneider Electric. We are grateful to Lenzing, Austria, for kindly providing Tencel<sup>®</sup> fibres. We thank C2MA the materials centre of Ales Mines for helping us to make composites.

#### 6 REFERENCES

- [1] A. Le Duc, B. Vergnes and T. Budtova. Polypropylene/natural fibres composites: analysis of fibre dimensions after compounding and observations of fibre rupture by rheo-optics. *Composites Part A*, **42**, 1727 (2011)
- [2] L.H. Switzer and D. J. Klingenberg. Rheology of sheared flexible fiber suspensions via fiber-level, flexible fiber-filled suspensions simulations, *J.Rheol.*, **47**, 649 (2003)
- [3] F. Berzin, B. Vergnes and L. Delamare. Rheological behavior of controlled-rheology polypropylenes obtained by peroxide-promoted degradation during extrusion: Comparison between homopolymer and copolymer. *J. Appl. Polym. Sci.*, **80**, 1243 (2001)
- [4] M. Keshtkar, M. C. Heuzey and P. J. Carreau. Rheological behavior of filled model suspensions: Effect of fiber flexibility. *J.Rheol.*, **53**,631 (2009)

# ANALYSE DE MATERIAUX COMPOSITES BIOSOURCES EN VUE D'ETUDIER LEUR DURABILITE

G. Apolinario Testoni<sup>1</sup>, P. Ienny<sup>1</sup>, S. Corn<sup>1</sup>, R. Léger<sup>1</sup>, A. Bergeret<sup>1</sup>, J. M. Haudin<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Centre des Matériaux des Mines d'Alès (C2MA-EMA), 6 avenue de Clavières, 30319 Alès Cedex - Tel: 04 66 78 56 22, Télécopie : 04 66 78 53 65 , [Guilherme.Apolinario@mines-ales.fr](mailto:Guilherme.Apolinario@mines-ales.fr)

<sup>2</sup> Centre de Mise en Forme des Matériaux (CEMEF-ENSMP), 1 rue Claude Daunesse, CS 10207, 06904 Sophia Antipolis Cedex - Tel: 04 93 95 75 03 Télécopie : 04 92 38 97 52.

**Mots clés :** composite biosourcé ; performances mécaniques ; analyse en vibrations libres

## 1. INTRODUCTION

A la fin du 20<sup>ème</sup> siècle a débuté une démarche globale consistant à tenir compte du point de vue environnemental dans l'industrie des matériaux composites (Nishino, 2004). Dans le secteur du nautisme, qui constitue 12% de la production mondiale de composites, l'industrie tente de substituer les matériaux traditionnels en résine polyester/fibre de verre par des solutions biosourcées. Depuis peu, il est possible d'acquérir en quantité industrielle des matrices polymériques biosourcées, mais leur prix élevé représente le principal frein à leur utilisation massive. Une alternative consiste en la fabrication de composites partiellement biosourcés à l'aide d'une matrice pétrosourcée et des fibres naturelles (végétales). D'autre part, en milieu marin, les matériaux sont généralement soumis à des sollicitations mécaniques (traction alternée, fatigue, chocs) couplées à des sollicitations environnementales (humidité, eau, température, UV, hydrocarbures...) qui conduisent à une détérioration de leurs propriétés mécaniques (Papanicolaou *et al.*, 2008). L'objectif des travaux en cours est de caractériser les composites renforcés par des fibres de lin (CRFL) à différentes échelles lorsqu'ils sont soumis à des sollicitations mécaniques *ex situ* (ou non-couplées). Il s'agira alors de mettre en place les essais permettant d'évaluer les propriétés initiales des biocomposites ainsi que leur évolution au cours du vieillissement hydrothermique. Ces résultats seront confrontés à ceux de composites renforcés par des fibres de verre (CRFV) de référence.

## 2. MATERIAUX ET METHODES

### 2.1 Matériaux et mise en oeuvre

La résine thermodurcissable choisie pour cette étude est une résine polyester insaturé isophthalique DCPD (dicyclopentadiène) fournie par CrayValley. Grâce à ses bonnes propriétés mécaniques ( $E = 3,4$  GPa et  $\sigma_{rup} = 40$  MPa) et sa bonne tenue thermique, cette résine est largement utilisée dans le secteur du nautisme. Deux types de renforts unidirectionnels (UD) ont été utilisés: des fibres de verre (fournies par Chomarar) et des fibres de lin (Chomarar et Biorenforts). Quelques caractéristiques de ces renforts sont rassemblées dans le Tableau 1 (données issues des fiches techniques) :

Tableau 1. Caractéristiques des tissus UD (fibres de lin et fibres de verre)

Matériau	Grammage (g/m <sup>2</sup> )	Epaisseur (mm)	E (GPa)	$\sigma_{rup}$ (MPa)
Fibre de verre (Chomarar)	408 ± 5	0,4	72	1840
Fibre de lin (Biorenforts)	400 ± 13	1,4	-	300
Fibre de lin (Chomarar)	670 ± 7	0,4	50	720

La méthode d'infusion sous vide a été choisie pour fabriquer les éprouvettes. Cette méthode est largement employée dans l'industrie nautique car elle permet de mettre en œuvre de grandes structures avec des taux de renforts optimisés associés à de faibles taux de vide.

## 2.2 Méthodes de caractérisation des tissus

Les propriétés de rupture en traction des tissus sont déterminées à l'aide d'une presse électromécanique MTS (capacité 100kN), pour des longueurs de jauge variables comprises entre 22mm et 106mm et une vitesse de déformation de 1%/min.

## 2.3 Méthodes de caractérisation des composites

Concernant la morphologie du composites, un microscope électronique à balayage environnemental haute résolution (MEBE Quanta 200 Feg) nous permet d'observer la forme et diamètre des fibres, ainsi que les interfaces fibre/matrice et le pourcentage volumique des fibres par analyse d'image.

Des essais de traction simple sont réalisés sur des éprouvettes (géométrie de type 4 - norme NF EN 2747) avec une presse électromécanique MTS de 100kN. Ces essais permettent de mesurer les propriétés mécaniques statiques des matériaux composites telles que le module d'Young, la contrainte et l'allongement à la rupture. Ces essais ont été réalisés à une vitesse de 1 %/min et sont instrumentés par une mesure optique sans contact de la déformation (par corrélation d'image).

Une autre technique rapide et non destructive permet de déterminer les modules élastiques des composites. Elle repose sur la mesure accélérométrique (Kistler 8732A500) des fréquences propres associées aux modes de vibration libre des éprouvettes par impact au marteau de choc (Kistler 9722A2000). Les pics de résonance sont analysés pour chaque direction de vibration, notamment : des modes de flexion dans le plan XY et XZ, des modes de traction dans le sens longitudinal et des modes de torsion. Les modules d'élasticité sont identifiés par recalage fréquentiel à l'aide d'un calcul de structure par éléments finis.

## 3. RESULTATS

### 3.1 Comportement des tissus

Les résultats des essais de traction simple sur les tissus de lin fournis par Biorenforts sont présentés sur la Figure 1. La distance entre les mors joue un rôle important sur le mécanisme de rupture et donc sur les grandeurs mesurées. Pour une faible distance entre mors (22 mm – Figure 1.a), on observe une rupture nette du tissu par coupure des fibres techniques. L'augmentation de cette distance (106 mm – Figure 1.b) provoque un changement du mécanisme de rupture qui se traduit par des glissements entre les fibres techniques de lin. Ce désenchevêtrement progressif modifie très substantiellement la courbe Force/Déplacement. Les résultats obtenus (pour une distance entre mors de 22 mm) sont recensés dans le Tableau 2.

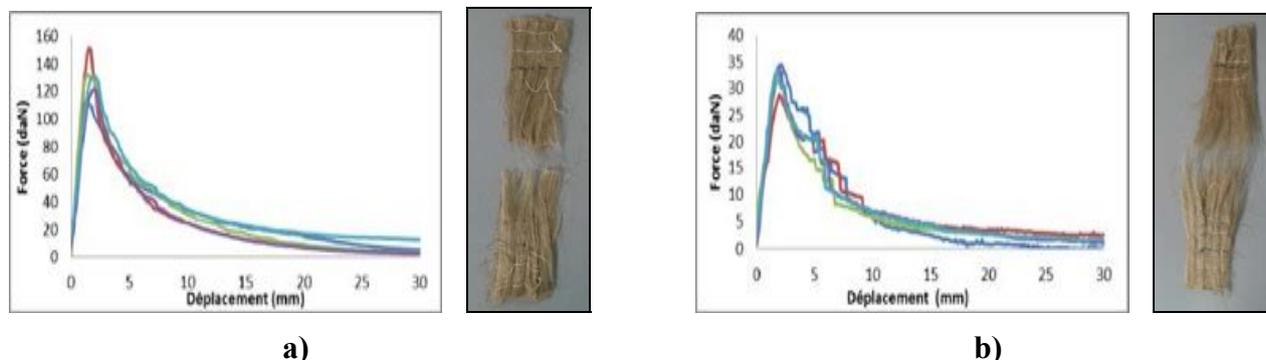


Figure 1. Essais de traction simple avec des tissus de lin (BioRenforts).

Tableau 2. Propriétés des tissus en traction simple.

Tissu	Pente (N/mm)	Force max. (N)
Verre	1028 ± 12	-
Lin (Chomarar)	698 ± 151	420 ± 90
Lin (Biorenforts)	102 ± 15	130 ± 16

L'extraction et la filière d'obtention des renforts tissés est un enjeu majeur pour la qualité du composite biosourcé final. Aussi cette première évaluation des fibres naturelles permet d'identifier le meilleur candidat pour la suite de l'étude. D'autres fournisseurs sont aussi à l'étude.

### 3.2 Comportement à l'échelle du composite

La « Figure 2 » montre l'arrangement des fibres selon une coupe transversale polie des matériaux composites de l'étude. Nous pouvons vérifier, dans la « Figure 2.a » la forme cylindrique des fibres de verre (diamètre moyen = 15 µm) et leur relativement bonne dispersion unitaire. Le traitement de la fibre par un agent silane conduit à une bonne adhésion fibre/résine. La « Figure 2.b » témoigne de la forme polygonale des fibres de lin observées ainsi que d'une répartition non homogène au sein du composite : on retrouve soit des faisceaux de fibres non dissociées soit des fibres unitaires (diamètre moyen = 16 µm) extraites de ces faisceaux. On note aussi des zones de vide aux interfaces fibre/matrice qui traduisent une mauvaise cohésion interfaciale.

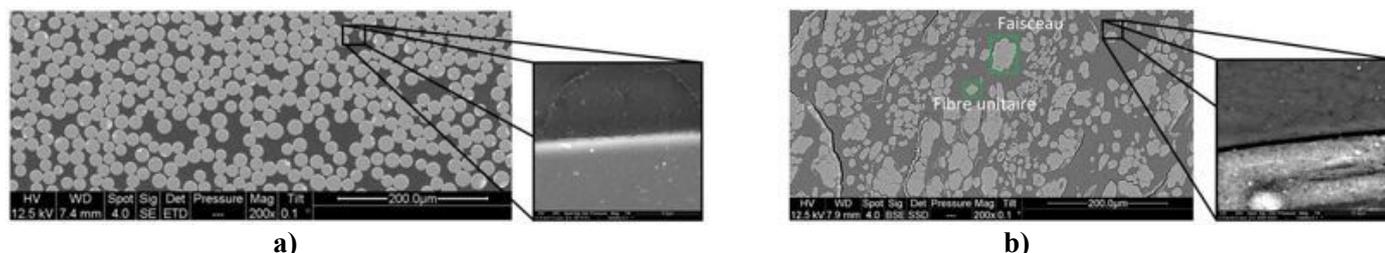


Figure 2. Coupe transversale et interfaces des composites polyester a) FV et b) FL

Le Tableau 3 regroupe les caractéristiques des éprouvettes réalisées par la méthode d'infusion sous vide et découpées à l'aide d'une scie diamantée :

Tableau 3. Caractéristiques des éprouvettes

Matériau	Qtité plis	Grammage	Epaisseur	Densité	V <sub>F</sub>
	unités	(g/m <sup>2</sup> )	(mm)	(g/cm <sup>3</sup> )	%
Polyester FV	6	2400	2,06 ± 0,12	1,90 ± 0,04	56
Polyester FL (Biorenforts)	6	2400	5,61 ± 0,18	1,27 ± 0,01	26
Polyester FL (Chomarar)	4	2680	4,16 ± 0,09	1,35 ± 0,01	51

Les propriétés mécaniques mesurées de ces composites sont détaillées dans le Tableau 4 :

Tableau 4. Propriétés mécaniques des CRFV et CRFL.

Composite	Propriétés	Module d'Young (GPa)	Module d'Young (GPa)	Contrainte à la	Allongement à la
		Analyse vibratoire	Photo-mécanique	rupture (MPa)	rupture (%)
Fibre de verre (Chomarar)		34,20 ± 1,27	36,48 ± 1,32	587,0 ± 14,7	1,39 ± 0,02
Fibre de lin (Biorenforts)		21,56 ± 1,85	14,39 ± 1,75	194,9 ± 13,1	1,33 ± 0,12
Fibre de lin (Chomarar)		24,65 ± 1,58	19,53 ± 1,78	201,4 ± 5,7	1,04 ± 0,21

Les résultats obtenus sont en accord avec ceux trouvés dans la littérature pour des composites de type UD similaires :

Composite epoxy-lin (Baley, 2012): E= 22,9 ± 2,6 GPa ; σ<sub>rup</sub>= 210 ± 25 MPa; ε<sub>rup</sub>= 1,2 ± 0,1 %.

Composite polyester-lin (Charlet, 2007): E= 19,5 ± 0,3 GPa ; σ<sub>rup</sub>= 199 ± 21 MPa; ε<sub>rup</sub>= 1,3 ± 0,2 %.

L'analyse vibratoire permet d'évaluer les caractéristiques mécaniques élastiques des composites. Cette méthode non destructive sera employée pour suivre la dégradation des propriétés mécaniques au cours du vieillissement hydro-thermique des composites biosourcés. A des fins de comparaison avec la méthode statique précédente, le module d'Young identifié sur la base du mode propre longitudinal est présenté dans le Tableau 4, montrant ainsi le bon accord entre ces deux techniques expérimentales.

Finalement, l'évolution du module d'Young des composites renforcés de fibre de verre et fibre de lin a été caractérisée lors du vieillissement hydro-thermique sur une durée de 116h dans l'eau à 30°C. La diminution de module élastique observée pour les CRFL est de l'ordre de 30%, ce qui est en accord avec la littérature (Assarar et al. 2010).

#### 4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Cette étude a permis de mettre en place une méthodologie d'analyse de matériaux composites utilisés dans le secteur du nautisme. Les observations microscopiques ont permis de mieux connaître la morphologie de la fibre de lin au sein du composite. La méthode d'infusion sous vide a été adoptée pour cette étude car elle permet d'obtenir, entre autres, un taux de renfort optimal. Les caractérisation des CRFV et les CRFL avant vieillissement hydrothermique montrent des valeurs de module d'élasticité comparables entre les essais par analyse vibratoire et les essais statiques. Des essais couplés hydro-thermo-mécanique feront partie de la suite des études du comportement en immersion des composites biosourcés.

#### REFERENCES

- Assarar M., Scida D., El Mahi A., Poilâne C., Ayad R., "Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: Flax-fibres and glassfibres." *Materials and Design* 32, (2010) pp. 788-795.
- Baley C., Le Duigou A., Bourmaud A., and Davies P., "Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites" *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 43, (2012) pp. 1226–1233.
- Charlet K., Baley C., Morvan C., Jernot J.P., Gomina M., and Bréard J., "Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites" *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 38, (2007), pp. 1912–1921.
- Kootsookos A., Mouritz A., "Seawater durability of glass- and carbon-polymer composites." *Composites Science and Technology* 64, (2004) pp.1503-11.
- Nishino T., Baillie C., "Natural fibre sources" *Green Composites: Polymer composites and the environment*. CRC Press, Boca Raton, (2004) pp. 49-56.
- Papanicolaou G., Xepapadaki A., Zarouchas D., "Effect of the water uptake on the creep behavior of glass-epoxy composites." *13<sup>th</sup> European Conference on Composite Materials*, (2008).

# ANALYSE DU COMPORTEMENT EN FLEXION DES RENFORTS A BASE DE FIBRES DE LIN

**A.Bassoumi**, J.Gillibert, G.Hivet, P.Ouagne *Laboratoire PRISME EA4229 Orléans, 8 rue Léonard de Vinci, 45072 Orléans Cedex. Téléphone : 02 38 49 24 49, Adresse(s) électronique(s) : [amal.bassoumi](mailto:amal.bassoumi)-, [jean.gillibert](mailto:jean.gillibert)-, [gilles.hivet](mailto:gilles.hivet)-, [@univ-orleans.fr](mailto:pierre.ouagne))*

**Mots clés : Comportement en flexion, Fibres de lin, Tissu, Armure, Humidité**

## 1. INTRODUCTION

Dans une optique de développement durable, le remplacement des composites existants par d'autres plus respectueux de l'environnement s'impose comme un enjeu majeur pour certaines industries comme celle du transport. Et en particulier, ceux à base de fibres de lin offrent un bon potentiel. Par opposition aux comportements en traction et en cisaillement largement considérés pour les renforts, le comportement en flexion était généralement négligé durant la simulation de l'emboutissage des pièces non-développables. En revanche, des études portant sur la simulation de la mise en forme ont montré l'importance de la rigidité en flexion pour des renforts tissés secs ou imprégnés (Hamila 2007). Cette rigidité se présente comme un paramètre critique par rapport aux déformations hors-plan qui peuvent se manifester à l'échelle macroscopique sous la forme de plis ou encore à l'échelle mésoscopique par un bouclage de mèches.

Depuis longtemps, la rigidité en flexion était considérée pour les textiles destinés à l'habillement. Dans ce contexte, Ghosh *et al* a exposé une revue critique des différents modèles avec des diverses hypothèses sur le comportement des fils (Ghosh *et al.* 1990). Cependant, la relation entre les rigidités fil et tissu s'est avérée très complexe. En revanche, peu de travaux se sont intéressés aux renforts pour composites: (Bilbao *et al.* 2009), (Yu *et al.* 2005) et (Lomov *et al.* 2003). Cette étude se concentre sur l'influence des paramètres tissu et des conditions environnementales sur la rigidité en flexion des renforts tissés en fibres de lin. Deux armures de base (taffetas et sergé) ainsi que deux compositions (hybride et pure lin) ont été examinés.

## 2. MATERIAUX ET METHODES

### 2.1 Matériaux

La première référence étudiée est un sergé 2x2 d'une densité surfacique de 422 g/m<sup>2</sup> et d'une épaisseur de 1,11 mm. La seconde est un taffetas d'une densité surfacique de 440 g/m<sup>2</sup> et d'une épaisseur de 1,09 mm. Les tissus sont composés de mèches plates en lin de 583 Tex pour le sergé et 616 Tex pour le taffetas.

Dans un deuxième temps, deux références d'hopsack 4x4 ont été étudiées également. Le premier est un tissu à base de 100% lin avec une densité surfacique de 494 g/m<sup>2</sup> et une épaisseur de 1,29 mm. Le second est un comélé 40% lin/PLA avec une densité surfacique de 518 g/m<sup>2</sup> et une épaisseur de 1,38 mm (voir Figure 1). On note également que la largeur de l'ensemble des quatre fils non torsadés est de 3 mm soit la même que la mèche plate du taffetas.

### 2.2 Protocole expérimental

La partie expérimentale a été réalisée en utilisant un banc de flexion basé sur le principe du cantilever dans lequel le tissu fléchi sous son propre poids. Le dispositif amélioré permet d'avoir des différents cas de charge liés aux différentes longueurs en flexion (Bilbao *et al.* 2009). Par méthode directe, on calcule la courbure et le moment à chaque point du profil. On

obtient ainsi une courbe pour chaque longueur en flexion. En revanche, comme on s'intéresse à une étude comparative des paramètres tissus, cette étude se concentre sur la rigidité en flexion. L'image du profil traitée peut être utilisée afin de déterminer le modèle de Peirce (Peirce 1937). Pour cela, les coordonnées du point d'encastrement et de l'extrémité libre doivent être précisées afin de calculer l'angle de déflexion.

En supposant un comportement élastique linéaire avec des petites déformations et des grandes déflexions, la rigidité en flexion  $G$  revient à :

$$G = \frac{L^3 \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)}{8 \tan \theta} Ad w g$$

où  $L$ ,  $\theta$ ,  $Ad$  et  $w$  sont respectivement la longueur en surplomb, la déflexion angulaire de l'extrémité du tissu par rapport à l'horizontale, la densité surfacique et la largeur du tissu.



Figure 1. Structures des références testées (sergé 2x2, toile, hopsack 4x4)

### 3. RESULTATS ET INTERPRETATIONS

#### 3.1 Effet de l'armure

Afin d'étudier l'effet de l'armure sur le comportement en flexion, des tissus de sergé et de taffetas ainsi que leurs mèches respectives ont été examinés. Pour chaque référence, cinq échantillons prélevés sur le même rouleau ont été testés dans le sens trame.

En comparant les armures, si on considère le comportement général (voir Figure 2), on remarque que le sergé est plus rigide que le taffetas. Néanmoins, cet effet n'est pas propre aux tissus où  $G/w$  passe de  $2,91 \pm 0,14$  N.mm pour le sergé à  $0,9 \pm 0,08$  N.mm pour le taffetas soit un facteur de 3,23. On a le même effet en comparant les mèches où on passe de  $1,18 \pm 0,13$  N.mm pour le sergé à  $0,45 \pm 0,02$  N.mm pour le taffetas soit un facteur de 2,62. Donc la faible rigidité dans le cas du tissu en taffetas n'est pas due exclusivement à l'armure mais également à une rigidité mèche plus faible. Une plus faible rigidité de la mèche dans le cas de le taffetas est prévue étant donné la différence en titrage des mèches 616 Tex contre 586 Tex pour le sergé.

#### 3.2 Effet de la composition

La composition du tissu, considérant deux tissus l'un en pure lin et l'autre hybride, a été examinée. Pour chaque référence de type hopsack 4x4, cinq échantillons prélevés sur le même rouleau ont été testés dans le sens trame. La Figure 3 présente la variation de la rigidité en flexion des deux hopsacks avec la longueur en flexion. Ainsi, on note une chute de rigidité d'environ 41 % en moyenne pour le tissu hybride en comparant à celui en pure lin. En effet,  $G/w$  passe de  $1 \pm 0,32$  N.mm pour le 100% lin à  $0,59 \pm 0,28$  N.mm pour le 40% lin/PLA. Autrement dit avec 60 % de PLA, le tissu devient plus souple. Un tel résultat est prévisible dans le cas des matériaux linéaires élastiques homogènes et isotropes sachant que la flèche verticale est inversement proportionnelle au module d'Young. En fait, le module d'Young du PLA, qui est d'environ  $3 \pm 0,15$  GPa (Placet 2009), est nettement plus faible que celui du lin qui est de  $58 \pm 15$  GPa environ (BALEY 2005).

L'emboutissage du renfort est une étape nécessaire lors de procédés tels que le RTM ou dans le cas des préimprégnés. En RTM, c'est suite à la mise en forme du renfort sec que la matrice

sera injectée, ce qui est le cas du renfort en pure lin. Pour les composites thermoplastiques, un emboutissage à chaud d'un tissu commélé telque le lin/PLA peut être utilisé. Ainsi, suite à la mise en forme les fibres thermoplastiques vont jouer le rôle de la matrice. En réduisant la rigidité en flexion, l'ajout du PLA peut affecter nettement la courbure acceptable du tissu embouti. D'après cette étude, le tissu hybride est probablement plus apte à produire des défauts à l'instar des plis lors de la mise en forme (Allaoui, Boisse et al. 2011).

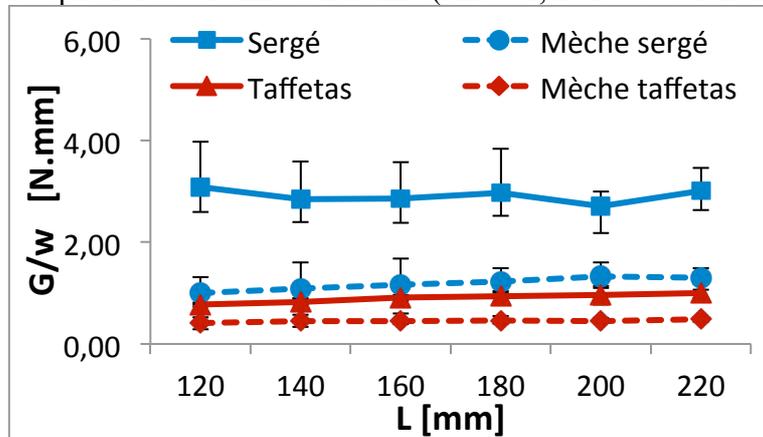


Figure 2. L'évolution de la rigidité en flexion  $G$  par unité de largeur  $w$  en fonction de la longueur en flexion  $L$  des mèches et des tissus

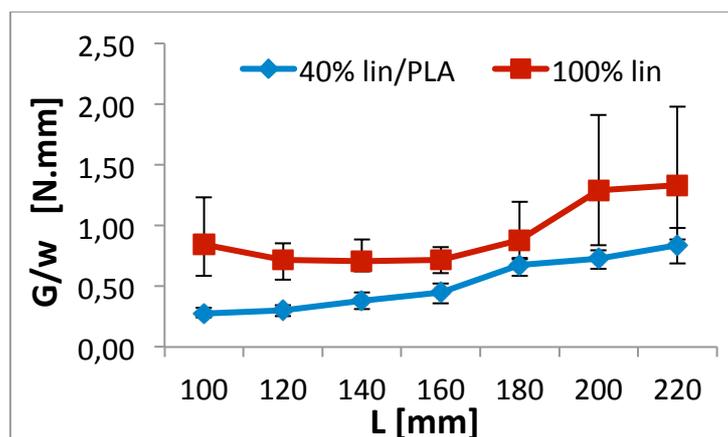


Figure 3. L'évolution de la rigidité en flexion  $G$  par unité de largeur  $w$  en fonction de la longueur en flexion  $L$  pour les Hopsack 4x4 en 100% lin et 40% lin/PLA

### 3.3 Effet de l'humidité

Comme les matériaux considérés dans cette étude sont à base de fibres naturelles, leurs propriétés mécaniques, en partie en flexion, peuvent évoluer avec la reprise en eau. C'est dans ce cadre que les hopsacks 100% lin et 40% lin/PLA ont été conditionnés à différentes humidités relatives  $HR$  (14%, 33%, 55%, 86% et 100%). Le protocole a fait appel d'une part à un séchage au four pendant 24h pour le 14%  $HR$ , d'autre part, à des enceintes climatiques avec des solutions salines aqueuses concentrées à une température contrôlée pour les autres humidités (AFNOR 2006). La Figure 4 montre que la rigidité augmente avec l'humidité jusqu'à un taux de 86%  $HR$ . En revanche, un excès d'absorption d'eau conduit à un effet opposé. Jusqu'à 86%  $HR$ , la hausse de la rigidité est probablement due à un effet plastifiant de l'eau suite à la présence d'eau libre. Par contre, un excès d'humidité peut augmenter le pourcentage d'eau liée. D'après (Stamboulis, Baillie et al. 2011), des observations au MEB sur des fibres conditionnées à 100%  $HR$  ont mis en évidence des microfissures suite au gonflement des structures qui peuvent expliquer la chute des propriétés mécaniques.

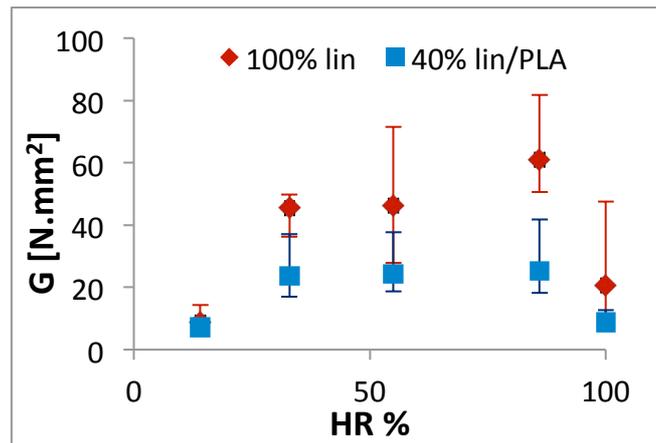


Figure 4. L'effet de l'humidité relative HR sur de la rigidité en flexion G des Hopsacks 4x4

#### 4. CONCLUSION

Afin d'optimiser le procédé d'emboutissage, la rigidité en flexion peut être améliorée en jouant sur les caractéristiques géométriques, la composition du tissu et le taux d'humidité. Qu'il soit avec la mèche ou le tissu global, le sergé présente une rigidité en flexion plus importante comparée au taffetas en lin. Ce papier montre également que le renfort hopsack contenant 60% de PLA est également plus apte à générer des défauts à cause d'une chute de la rigidité en flexion comparée au hopsack en 100% lin. Finalement, on conclue que les conditions environnementales lors du procédé de mise en forme doivent être contrôlées.

#### REFERENCES

- Bilbao, E., D. Soulat, et al. (2009). "Experimental Study of Bending Behaviour of Reinforcements", *Experimental Mechanics*, **50**(3): 333-351.
- Ghosh, T. K., S. K. Batra, et al. (1990). "The Bending Behaviour of Plain Woven Fabrics. Part I: A Critical Review", *J. Textile Inst*, **81**: 245-254
- Hamila, N. (2007). "Simulation de la mise en forme des renforts composites mono et multi plis", Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.
- Lomov, S., I. Verpoest, et al. (2003). "Carbon composites based on multiaxial multiply stitched preforms. Part 2. kes-f characterisation of the deformability of the preforms at low load", *Composite Part A Appl Sci Manuf*, **34**(359-370).
- Peirce, F. (1937). "The geometry of cloth structure", *J Text Inst*, **28**: 45-96.
- Yu, W. R., M. Zampaloni, et al. (2005). "Analysis of flexible bending behavior of woven preform using non-orthogonal constitutive equation", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **36**(6): 839-850.
- Allaoui, S., P. Boisse, et al. (2011). BALEY, C. (2005). "Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites", *Techniques de l'ingénieur Textiles à usage technique*, ref article : n2220.
- Placet, V. (2009). "Effect of hygrothermal treatment on the mechanical properties of natural fibres composites", *Journées Nationales sur les Composites. France 17*.
- Allaoui, S., P. Boisse, et al. (2011). "Experimental and numerical analyses of textile reinforcement forming of a tetrahedral shape." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* **42**(6): 612-622.
- AFNOR (2006). "Plastics - Small enclosures for conditioning and testing using aqueous solutions to maintain the humidity at a constant value". NF EN ISO 483:2006.
- Stamboulis, A., C. A. Baillie, et al. (2011). "Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers." *Composite Part A* **32**: 1105-1115.

## **SOLUTIONS POUR LA MISE EN FORME DE RENFORTS TISSÉS A BASE DE FIBRES DE LIN**

**E. Capelle**, P. Ouagne, *Laboratoire PRISME, 8 rue Léonard de Vinci, 45 072 Orléans Cedex. 02.38.49.44.68, emilie.capelle@etu.univ-orleans.fr, pierre.ouagne@univ-orleans.fr*

D. Soulat, *GEMTEX, ENSAIT, 2 Allée Louise et Victor Champier, BP 30329, 59 056 Roubaix. 03.20.25.89.36, damien.soulat@ensait.fr*

D. Duriatti, S. Guéret, *Groupe Depestele, 5 rue de l'église, 14 540 Bourguébus. 02.31.23.92.90, dduriatti@depestele.com, sgueret@depestele.com.*

**Mots clés : Renforts tissés, Fibres végétales, Emboutissage.**

### 1. INTRODUCTION

Ce travail se concentre sur la première étape du procédé RTM (Resin Transfer Molding) (Buntain & Bickerton, 2007) qui est l'emboutissage de renforts secs. L'utilisation de ce procédé de mise en forme peut engendrer différents défauts qui sont introduits au niveau de la structure des renforts (Potter *et al.*, 2008) et qui peuvent réduire les performances des pièces composites finales. A l'échelle du renfort, il est possible d'analyser si la préforme est bien réalisée, si des plis ou du détissage apparaissent dans la zone utile, et si la répartition de l'épaisseur et de la densité de fibres restent uniformes (Hivet *et al.*, 2009 ; Moothoo *et al.*, 2011). A l'échelle des mèches, d'autres défauts peuvent apparaître ; le désalignement des mèches dans le plan du renfort (Potter *et al.*, 2008) ou leur désalignement hors plan, appelé bouclage. Tous ces défauts ont une influence significative sur l'étape d'imprégnation de la résine, en modifiant la porosité et la cohésion du renfort, et donc impactent sur les performances des pièces réalisées. Des travaux expérimentaux récents ( Capelle *et al.*, 2012 ; Hivet *et al.*, 2009 ; Moothoo *et al.*, 2011 ; Soulat *et al.*, 2009) ont porté sur l'apparition du phénomène de bouclage des mèches, également appelé distorsion des mèches (Potter *et al.*, 2008) durant la mise en forme. Ce phénomène est la conséquence d'un comportement fléchissant spécifique dans le plan des mèches sujettes à des déformations couplant de la tension biaxiale et du cisaillement lors de l'emboutissage sur des formes complexes de poinçon.

Par une approche expérimentale, l'influence de l'architecture de renforts tissés en lin lors de la mise en forme de géométries complexes sera étudiée. Les fibres naturelles, issues de ressources renouvelables, de faible densité et avec de hautes propriétés mécaniques spécifiques, ont largement été étudiées au niveau du comportement en traction des fibres individuelles ou groupes de fibres de différentes natures et origines (Baley, 2002). Cependant, peu de travaux s'intéressent au comportement mécanique d'ensembles de fibres ou analysent plus particulièrement la déformabilité de structures tissées.

Ce travail se propose donc d'analyser la faisabilité d'emboutir sur forme complexe des renforts tissés à base de fibres de lin. Une attention particulière est portée aux défauts de bouclage qui peuvent apparaître durant l'emboutissage et des solutions sur les moyens de prévenir leur apparition seront étudiées à l'échelle du renfort.

## 2. DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET MATERIAU

La mise en forme des renforts est réalisée sur une machine d'emboutissage constituée d'un poinçon et d'une matrice ouverte (Fig.1a) permettant d'observer les déformations locales des mèches et l'évolution des défauts sur la préforme au cours des essais. Le maintien des renforts est réalisé à l'aide d'un système de serre-flans (Fig.1b), appliquant individuellement des pressions variables autour du poinçon. Durant nos travaux, un poinçon de forme tétraédrique a été utilisé.

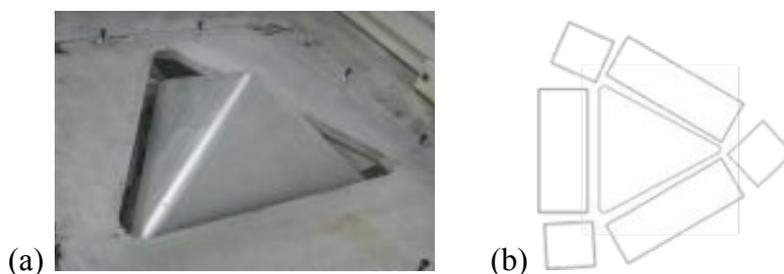


Figure 1.(a) Poinçon tétraédrique à travers la matrice ouverte – (b) Système de serre-flans classique

Le renfort utilisé dans cette étude (Fig.2) est un renfort taffetas en fibres de lin réalisé par le Groupe Depestele. Sa masse surfacique est de  $280\text{g/m}^2$  et il se compose de mèches de fibres parallèles, non retordues, de titrage 500 tex. Ce renfort est déséquilibré avec une réduction 1,8 fois plus importante dans le cas des mèches de chaîne, entraînant un espacement important entre les mèches de trame.

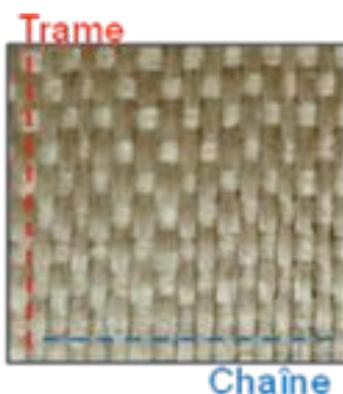


Figure 2. Renfort taffetas non équilibré

## 3. ANALYSE DES PREFORMES ET SOLUTIONS

### 3.1 Analyse globale des défauts

Ce travail se concentre sur le défaut de bouclage (Fig.3a) observé sur les différentes préformes réalisées. Ce défaut apparaît entre le sommet et la base du tétraèdre sur différentes faces de la préforme selon l'orientation du renfort sur le poinçon. En effet, les boucles présentes sur les différentes préformes se localisent autour des mèches passant par le sommet du tétraèdre et uniquement sur les mèches de chaîne alors que les mèches de trame n'y sont pas sujettes.

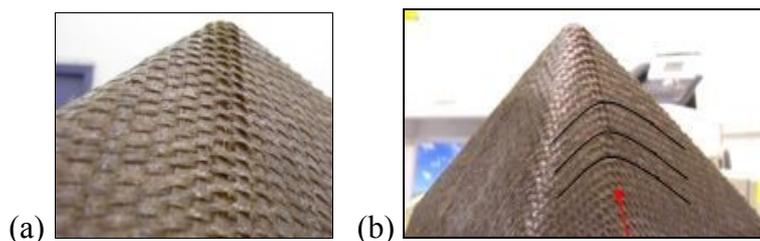


Figure 3. (a) Présence de boucles sur les mèches de chaîne – (b) Fléchissement des mèches

### 3.2 Influence des paramètres du procédé de mise en forme

De manière plus précise, la formation de boucles lors de la mise en forme est liée au comportement biaxial du renfort. Effectivement, la déformation des mèches passant par le sommet du tétraèdre est la plus importante et conduit à un fléchissement dans leur plan des mèches qu'elles croisent (Fig.3b). Lorsque ces mèches sont des mèches de chaîne, leur flambement hors plan est autorisé par l'espacement important entre les mèches de trame.

Afin de réduire la déformation des mèches passant par le sommet du tétraèdre et ainsi atténuer le phénomène de bouclage, la première solution envisagée est de supprimer la tension appliquée par les serre-flans sur ces mèches. Un nouveau dispositif de serre-flans a été élaboré (Fig.4a) et de nouveaux essais de mise en forme ont été réalisés. Les nouvelles préformes obtenues sont alors exempt de boucles (Fig.4b).

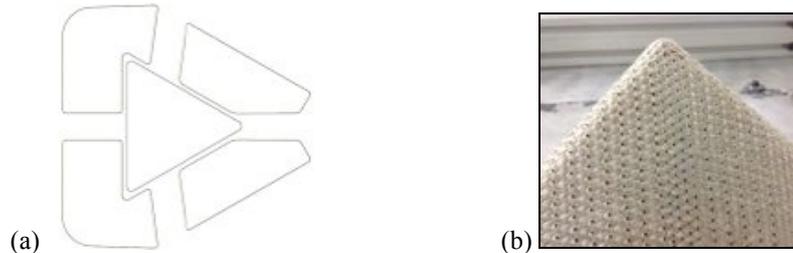


Figure 4. (a) Nouveau système de serre-flans – (b) Préforme obtenue avec le nouveau dispositif

### 3.3 Influence de l'architecture des renforts

Dans un second temps, une observation s'est attachée à l'architecture du renfort tissé utilisé. En effet, le fléchissement dans le plan des mèches de trame n'entraîne pas leur flambement hors plan comme c'est le cas pour les mèches de chaîne. L'hypothèse avancée pour cette observation est la différence de réduction entre les deux directions du renfort. La réduction est plus importante pour les mèches de chaîne (Fig.5a), ce qui correspond à un tissage plus serré dans cette direction et permet alors de restreindre le flambement hors plan des mèches de trame.

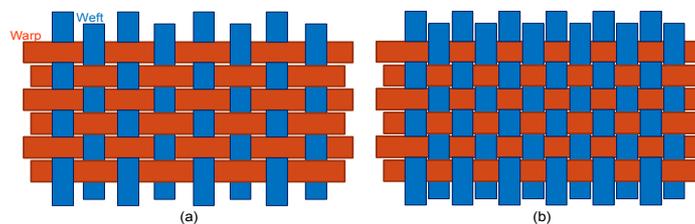


Figure 5. (a) Modèle du renfort actuel – (b) Modèle pour un renfort adapté

Selon cette hypothèse, un nouveau renfort a été produit par le Groupe Depestele afin d'avoir une réduction la plus importante possible et équivalente dans les deux directions du renfort (Fig.5b) et ainsi reserrer le tissage. Avec une masse surfacique de 440g/m<sup>2</sup>, ce nouveau renfort équilibré (Fig.6) a alors été testé sur le dispositif classique de serre-flans afin de comparer les résultats. Les résultats sont équivalents à ceux obtenus avec le nouveau dispositif de serre-flans, avec une disparition des boucles sur les mèches de chaîne.

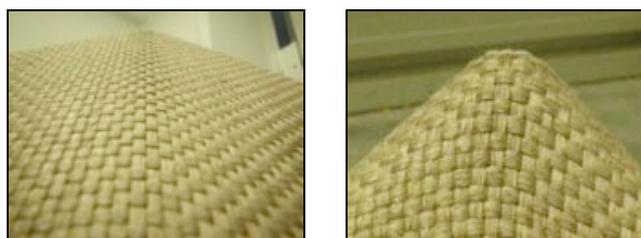


Figure 6. Préforme obtenue avec un renfort équilibré

#### 4. CONCLUSION

Cette étude a permis de mettre en évidence la possibilité de supprimer le phénomène de bouclage lors de la mise en forme sur des géométries complexes. Les deux solutions envisagées durant ces travaux présentent de bons résultats, cependant, les contraintes associées ne doivent pas être omises. En effet, une architecture avec une réduction importante peut affecter les propriétés mécaniques de la pièce composite finale, ainsi que son poids. L'optimisation du dispositif de serre-flans permet de mettre en forme un renfort non équilibré sans boucles, mais d'autres défauts hors de la zone utile, comme le plissement du renfort ou le glissement des mèches peuvent apparaître. Enfin, ces solutions permettent d'obtenir des préformes sans défaut sur une forme complexe de poinçon défini mais d'autres essais sont nécessaires afin de pouvoir utiliser d'autres géométries.

#### REFERENCES

- Baley C. (2002). Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Composites: Part A*, 33, 939–948.
- Buntain M. J., Bickerton S. (2007). Modeling forces generated within rigid liquid composite molding tools. Part A: Experimental study. *Composites: Part A*, 38, 1729–1741.
- Capelle E., Ouagne P., Tephany C., Soulat D., Duriatti D., Hivet G., Allaoui S. (2012). Analysis of the tow buckling defect during the complex shape forming of a flax woven fabric. *15th European Conference on Composite Materials*. Venice.
- Hivet G., Allaoui S., Soulat D., Wendling A., Chatel S. (2009). Analysis of woven reinforcement preforming using an experimental approach. *Proceedings of the 17th International Conference on Composite Materials*. Edinburgh.
- Moothoo J., Soulat D., Ouagne P., Allaoui S. (2011). Caractérisations mécaniques de renforts à base de fibres naturelles pour l'analyse de la déformabilité. *Comptes rendus des JNC 17*. Poitiers.
- Potter K., Khan B., Wisnom M., Bell T., Stevens J. (2008). Variability, fibre waviness and misalignment in the determination of the properties of composite materials and structures. *Composites: Part A*, 39, 1343–1354.
- Soulat D., Allaoui S., Chatel S., Works I., Modelling M. (2009). Experimental device for the preforming step of the RTM process. *International Journal of Material Forming*, 2(1), 181–184.

# INFLUENCE DES CONDITIONS HYGROTHERMIQUES SUR LE COMPORTEMENT ET LES PROPRIETES MECANQUES DES FIBRES LIBERIENNES DE CHANVRE.

O. Cisse, V. Placet, M.L. Boubakar *FEMTO-ST, Département de Mécanique Appliquée, 24 rue de l'Épitaphe, F-25000 Besançon. Téléphone : 03 81 66 60 15, ousseynou.cisse@univ-fcomte.fr, vincent.placet@univ-fcomte.fr, lamine.boubakar@univ-fcomte.fr*

**Mots clés : Fibres élémentaires de chanvre, comportement en traction, couplages hygro-mécaniques.**

## 1. INTRODUCTION

Face aux problèmes environnementaux et à la crise énergétique actuelle, les fibres d'origine végétale constituent une alternative permettant de remplacer certaines fibres synthétiques ou énergivores comme le verre. Malgré les nombreux avantages qu'elles cumulent sur les plans techniques, écologiques et socio-économiques, un frein à leur utilisation massive réside dans leur forte sensibilité à la température et à l'humidité. Dans les applications composites, ces fibres peuvent être soumises à des sollicitations hygrothermiques plus ou moins sévères à la fois au cours du procédé de fabrication et également lors de leur utilisation en service. Ces dernières années de nombreux efforts ont été consentis pour mieux comprendre les effets de l'environnement et plus particulièrement de l'humidité sur le comportement des fibres végétales et des composites renforcés par ces mêmes fibres. A l'échelle des fibres, la littérature fait état de résultats parcellaires et parfois contradictoires. L'objectif de ce travail est de contribuer à la caractérisation du comportement thermo-hygro-mécanique et à la détermination des propriétés associées pour des fibres élémentaires issues du chanvre.

## 2. RELATIONS EAU/TEMPERATURE/PROPRIETES PHYSIQUES DES FIBRES VEGETALES

En raison de la nature hydrophile de certains composants de la paroi cellulaire des fibres végétales, la teneur en eau de celles-ci varie en fonction de l'humidité relative (HR) de l'air l'environnant. La figure 1 issue des travaux de Hill, C.A.S *et al.* (2009) présente une courbe d'isotherme de sorption type pour les fibres de chanvre. La sorption d'eau résulte de la combinaison d'un ensemble de mécanismes (S. Okubayashi *et al.* (2004)). Les vitesses des différents mécanismes dépendent directement de l'accessibilité des sites de sorption mis en jeu (groupes polaires, micro-cavités et porosités, molécules d'eau...), Cf. figure (2). La forme sigmoïde des courbes de sorption reflète la combinaison de cet ensemble de mécanismes entrant en compétition dans les fibres. La sorption d'eau induit chez les fibres végétales des variations dimensionnelles importantes de la paroi cellulaire dues aux ruptures des liaisons hydrogènes intra et inter-moléculaires. Outre les propriétés physiques, le comportement et les propriétés mécaniques des fibres végétales sont également affectées par la sorption/désorption d'eau. Les cinétiques de sorption dépendent également étroitement de la température.

Une exposition prolongée des fibres à la température peut entraîner outre la variation de leur teneur en eau, une dégradation des constituants polymériques de la paroi cellulaire. La figure (3) montre par exemple l'évolution de la masse d'une fibre élémentaire de lin en fonction de la température. Cette courbe peut être décomposée en trois zones. Dans la première partie ( $T < 130^{\circ}\text{C}$ ), la diminution de masse est attribuée à une diminution de la teneur en eau de la fibre, jusqu'à atteindre un état anhydre. La deuxième partie de cette courbe correspondrait à une dégradation de la cellulose et atteint un point maximum autour de  $320^{\circ}\text{C}$ . La perte de masse au-delà de  $320^{\circ}\text{C}$  est attribuée à une dégradation des composés non cellulosiques et en particulier des pectines.

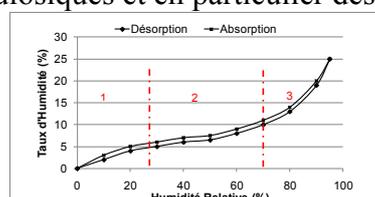


Figure 1 : Isotherme de sorption d'une fibre élémentaire de chanvre à 25°C. D'après Hill, C.A.S et al. (2009)

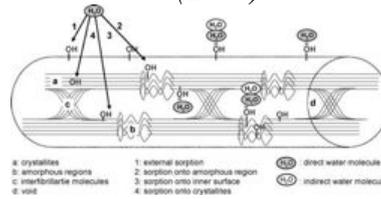


Figure 2 : Illustration schématique des sites de sorption dans la paroi cellulaire, d'après S. Okubayashi et al. (2004)

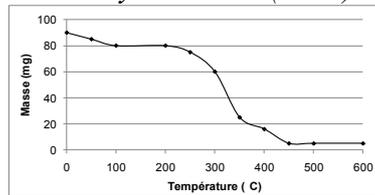


Figure 3 : Comportement thermique d'une fibre élémentaire de lin, d'après Van de Velde et al. (2001)

Il existe donc une relation étroite entre température et teneur en eau. Ce couplage rend parfois difficile l'interprétation des résultats expérimentaux, la déconvolution des contributions de la température et de l'humidité sur les propriétés mécaniques étant particulièrement difficile.

### 3. MATERIELS ET METHODES

Les fibres élémentaires de chanvre ont été caractérisées dans des conditions environnementales contrôlées. Un dispositif expérimental dédié a été développé au sein du laboratoire. Les fibres élémentaires testées ont une longueur utile de 10 mm. Le diamètre moyen est déterminé en faisant dix mesures le long de la fibre sous microscope optique. La section utile est déterminée à partir de ce diamètre moyen en considérant la fibre parfaitement cylindrique et pleine.

Nous disposons d'un appareil de mesure doté d'une cellule de force de 2N avec une résolution de 3mN et d'un capteur de déplacement LVDT de +/-2mm avec une résolution de 0.5µm. Pour le contrôle de l'environnement un générateur d'humidité relative qui fournit 10 à 90%HR sur des plages de températures de 20 à 70°C, avec un débit de 0.5 à 5L/min, une cabine dimensionnée pour obtenir des vitesses de variations d'humidité relative allant de 1 à 25%HR/min, un capteur d'humidité relative. Pour le contrôle de la température un four (30-285°C) est intégré dans l'appareil de mesure et un capteur de température.

Trois types de courbe ont été identifiés sur les lots de fibres testés. Ces types de comportement ont été observés également sur le chanvre par A. Duval et al. (2011). Compte tenu du comportement non-linéaire de certaines courbes, le module d'Young apparent est déterminé par régression linéaire sur la seconde partie de la courbe (figure (4)). La contrainte à rupture est déterminée à partir de la mesure de la force et de la section utile de la fibre.

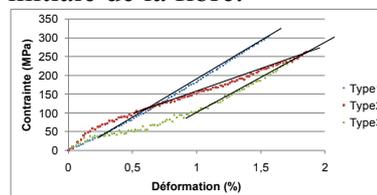


Figure 4 : Types de comportement de la fibre élémentaire de chanvre en traction quasi-statique.

### 4. RESULTATS ET DISCUSSIONS

#### 4.1 Influence de l'humidité relative sur les propriétés mécaniques

La figure (5) présente les résultats obtenus pour 4 lots d'une soixantaine de fibres élémentaires de chanvre testées en traction quasi-statique à différents niveaux humidité relative à 25°C. Compte tenu

de la variabilité des propriétés mécaniques obtenue, une représentation statistique a été utilisée. Elle permet de dégager des tendances statistiquement représentatives (Placet V *et al.* (2011)).

Contre toute attente, la valeur médiane du module élastique apparent, croit de 13.7 à 22.7 GPa pour une humidité relative qui varie entre 10% et 80%. Cette augmentation de rigidité avec l'humidité relative est liée à la possible évolution de certains paramètres microstructuraux tels que l'angle des microfibrilles sous sollicitations mécaniques. Ces mécanismes seraient activés par l'humidité relative.

La contrainte à rupture présente une valeur maximum pour une humidité relative qui se trouve entre 50 et 70%. Ce résultat semble en accord avec les résultats de van Voorn B *et al.* (2001). On peut constater que cette valeur seuil en humidité relative pour les propriétés de résistance des fibres correspond également à un point de transition dans les mécanismes régissant la sorption d'une fibre élémentaire de chanvre, Cf. figure (1).

Pour ce qui est de la déformation à rupture, l'humidité relative ne semble pas avoir une influence statistiquement représentative.

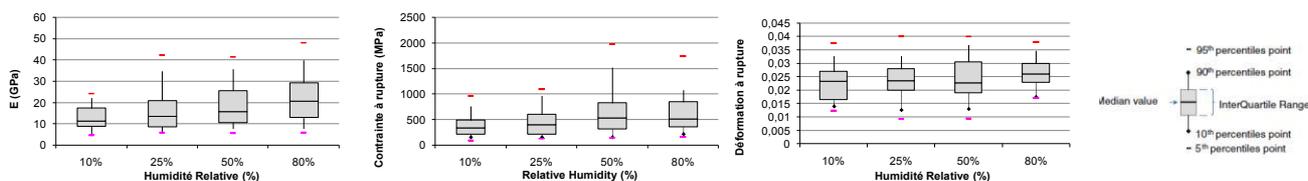


Figure 5 : Evolution des propriétés mécaniques en fonction de l'humidité relative.

#### 4.2 Influence de l'humidité relative sur le comportement différé en traction

L'influence de l'HR sur le comportement différé de la fibre élémentaire de chanvre en traction a été étudiée (figure (6)) grâce à la mise en œuvre d'essais de fluage. Nos résultats ont montré en plus d'une forte influence de l'humidité relative sur la vitesse de déformation de la fibre élémentaire, un phénomène d'accélération du fluage sous variations d'HR. Ce couplage mécano-sorptif, bien qu'essentiel pour la compréhension du comportement des fibres sur le long terme, n'est que rarement abordé dans la littérature. Seuls quelques travaux portant sur des fibres issues du bois sont disponibles dans la littérature (Sedlachek KM *et al.* (1994), Olsson AM *et al.* (2007)) et aucun résultat n'est à l'heure actuelle publié à la connaissance des auteurs, pour des fibres élémentaires issues de plantes annuelles. Pour des conditions de chargement l'existence de ce fluage mécano-sorptif n'a été observée pour le chanvre que pour des vitesses de variation de l'HR supérieures à 20%HR/min. Ce résultat semble en accord avec les hypothèses du « gradient » proposées par certains auteurs Habberger CC *et al.* (2000-2001), l'accélération du fluage serait induite par le gradient de contraintes généré dans la paroi cellulaire par la sorption d'eau.

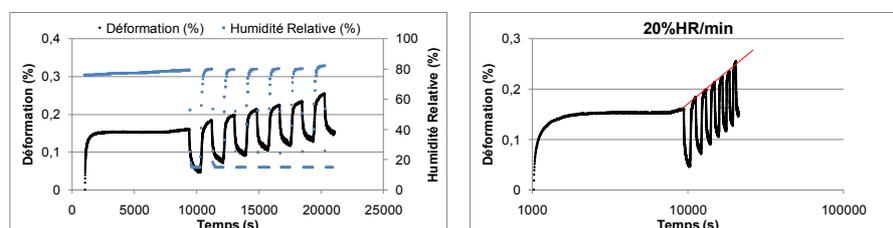


Figure 6 : Comportement en fluage de la fibre élémentaire de chanvre sous l'effet de la variation d'humidité relative.

#### 4.3 Influence de la température sur les propriétés mécaniques

La figure (7) présente quatre lots d'une dizaine de fibres élémentaires de chanvre, exposés à une température de 200°C pendant des durées de 10, 30, 60 et 600 min, puis testés en traction quasi-statique sous environnement ambiant (T=23°C ; HR=25%). Le choix de cette température a été réalisé en relation avec les températures mises en œuvre dans un certain nombre de procédés de

fabrication des matériaux composites à matrice organique. Les résultats montrent une forte diminution des propriétés mécaniques en fonction du temps d'exposition à la température de 200°C. Pour la rigidité apparente, une chute drastique (de 25GPa à 10 GPa en moyenne) est observée dès les temps d'exposition les plus courts. Une exposition prolongée à cette température ne semble pas entraîner une évolution significative de cette rigidité. Pour la résistance des fibres la chute est également drastique et la diminution est proportionnelle au temps d'exposition à la température de 200°C. Pour la déformation à rupture, une légère chute est observée pour les temps d'exposition les plus courts, une chute brutale est observée après une heure d'exposition. Il est important de souligner que ces mesures ont été réalisées après le refroidissement de la fibre. Cette variation de température et les variations d'humidité associées ont pu engendrer la propagation de l'endommagement au sein des fibres.

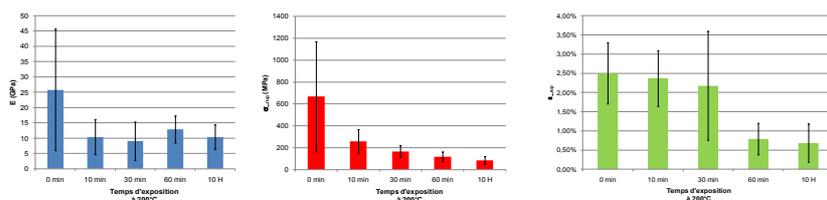


Figure 7 : Propriétés mécaniques en traction quasi-statique sous l'effet de la température.

## 5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Ces travaux nous ont permis d'apporter des éléments de compréhension sur le comportement thermo-hygro-mécanique des fibres élémentaires de chanvre. Les résultats permettent également de décrire quantitativement les effets de l'HR et de la température sur les propriétés mécaniques en traction. Pour apporter un éclairage complet sur les couplages hygrothermiques et sur les mécanismes mis en jeu dans la paroi cellulaire, il apparaît nécessaire d'améliorer les moyens expérimentaux et en particulier de développer des outils permettant de décorréler les effets de la température et de la teneur en eau. L'étape suivante dans cette thèse consiste à implémenter ces résultats dans un modèle de comportement des fibres de chanvre.

## REFERENCES

- Antoine Duval, Alain Bourmaud, Laurent Augier, Christophe Baley, "Influence of the sampling area of the stem on the mechanical properties of hemp fibers", *Materials Letters*, (2011), Pages 797-800
- Haberger CC, Coffin DW, "The role of stress concentrations in accelerated creep and sorption-induced physical aging", (2000), *J Pulp Pap Sci* 26(4):145-157
- Haberger CC, Coffin DW, Hojjatie B., "Influence of humidity cycling parameters on the moisture-accelerated creep of polymeric fibers", (2001), *J Polym Sci Pol Phys* 39:2048–2062
- Hill, C. A. S., Norton, A. and Newman, G., "The water vapor sorption behavior of natural fibers", (2009), *J. Appl. Polym. Sci.*, 112: 1524–1537
- Satoko Okubayashi, Ulrich J. Griesser, Thomas Bechtold, "A kinetic study of moisture sorption and desorption on lyocell fibers", *Carbohydrate Polymers*, (2004), Pages 293-299
- Olsson AM, Salmén L, Eder M, Burgert I., (2007), "Mechano-sorptive creep in wood fibres". *Wood Sci Technol* 41:59-67
- Placet V, Cisse O, Boubakar L. (2011), "Influence of environmental relative humidity on the tensile and rotational behavior of hemp fibres". *J Mater Sci* 2012;47:3435–46.
- Sedlachek KM, Ellis RL., (1994), "The effect of cyclic humidity on the creep of single fibers of Southern pine". In: Fellers C, Laufenberg TL (eds) *Moisture-induced creep behaviour of paper and board*. STFI, USDA, Stockholm, pp 22–49
- Van de Velde, K. and Baetens, E., (2001), "Thermal and Mechanical Properties of Flax Fibres as Potential Composite Reinforcement", *Macromol. Mater. Eng.*, 286: 342–349
- Van Voorn B, Smit HHG, Sinke RJ, de Klerk B (2001) *Composites: Part A* 32:1271

# VALIDATION PAR DIFFRACTION DES RAYONS X D'UN MODELE MULTI ECHELLE DE TRANSFORMATION DE PHASE DES ALLIAGES A MEMOIRE DE FORME

*M. D. Fall, K. Lavernhe-Taillard et O. Hubert*

*LMT-Cachan, ENS Cachan /CNRS UMR 8535/PRES UniverSud Paris*

*61 Avenue du Président Wilson, F-94235 Cachan Cedex, France*

Contact: [hubert@lmt.ens-cachan.fr](mailto:hubert@lmt.ens-cachan.fr)

**Mots clés : Alliages à Mémoire de Forme (AMF), Diffraction des Rayons X (DRX), Superélasticité, (transformation) martensitique, (modélisation) multi échelle**

## 1. INTRODUCTION

Le comportement des alliages à mémoire de forme (AMF) est régi par les mécanismes de transformation martensitique à l'échelle de la microstructure, à l'origine de leurs propriétés remarquables (mémoire de forme, superélasticité). Elle peut être induite thermiquement ou mécaniquement avec un couplage fort. La mise au point d'outils de conception fiables nécessite une meilleure prédictibilité du comportement réel des alliages à mémoire de forme sous sollicitations thermomécaniques complexes. Le choix d'une modélisation multiaxiale et multi échelle est pertinente. Parallèlement au développement de ce modèle, une étude expérimentale est nécessaire afin d'une part d'identifier les propriétés intrinsèques du matériau étudié, et d'autre part de valider les estimations de la modélisation. A cette fin, des mesures de fractions volumiques de phase par diffraction des rayons X (DRX) in situ ont été entreprises lors de sollicitations thermiques (cycles de chauffage-refroidissement) et mécaniques (traction uniaxiale). La source utilisée est une source au cobalt ( $\lambda_{Co}=0.17853\text{nm}$ ). Les diffractogrammes donnent l'intensité diffractée par les plans cristallographiques en fonction de leur angle de diffraction. L'exploitation des résultats de diffractométrie nécessite un modèle analytique de diffraction prenant en compte la structure cristalline et les conditions particulières de diffraction. La combinaison de ce modèle de diffraction et du modèle multi échelle permet d'obtenir des diffractogrammes simulés. Ceux-ci seront comparés aux diffractogrammes expérimentaux à des fins de validation. Cette étude est menée sur des échantillons d'un alliage de Nickel Titane quasi équiatomique ( $\text{Ni}_{49.95\text{at\%}}\text{Ti}$ ).

## 2. CARACTERISATION DU MATERIAU

Des études préalables par EBSD (Electron BackScattered Diffraction) (figure 1.a) et par DSC (Differential Scanning Calorimetry) (figure 1.b) ont été menées sur le matériau. La transformation de phase de l'austénite à la martensite est exothermique et la transformation inverse endothermique. La mesure DSC permet d'estimer les sauts d'enthalpies et d'entropies associés. A haute température le NiTi est austénique et présente une maille cubique centrée uni variante ( $a_0=0.3015\text{nm}$ ). La phase à basse température martensitique est monoclinique ( $a=0.2889\text{nm}$ ;  $b=0.412\text{nm}$ ;  $c=0.4662\text{nm}$ ;  $\beta=96.8^\circ$ ) et de plus faible symétrie (12 variantes). L'analyse DSC montre l'existence d'une phase intermédiaire hexagonale appelée phase R ( $a_H=0.7345\text{nm}$ ;  $c_H=0.5272\text{nm}$ ) avec 4 variantes. Les mesures par EBSD montrent que le matériau est austénitique à température ambiante et qu'il présente une texture isotrope transverse héritée du procédé de fabrication (forgeage).

## 3. MODELISATIONS

### 3.1 Modèle Multi échelle (Maynadier et al, 2012)

Le modèle proposé se base sur une formulation thermodynamique des énergies des variantes à l'échelle de la microstructure. Une démarche de changement d'échelle est adoptée pour relier les grandeurs locales aux grandeurs macroscopiques.

#### 3.1.1 Expression des énergies locales

Chaque (variante  $\phi$  de) phase est caractérisée par une énergie libre (1) procédant d'une composante chimique (2) et d'une composante mécanique élastique (3).

$$W_\phi = W_\phi^T + W_\phi^\sigma \quad (1)$$

$$W_{\varphi}^T = H_{\varphi} - TS_{\varphi} \quad (2)$$

$$W_{\varphi}^{\sigma} = \frac{1}{2} \boldsymbol{\sigma}_{\varphi} : \mathbf{C}_{\varphi}^{-1} : \boldsymbol{\sigma}_{\varphi} \quad (3)$$

$H_{\varphi}$  et  $S_{\varphi}$  désignent l'entropie et l'enthalpie de la variante; T est la température absolue (K);  $\boldsymbol{\sigma}_{\varphi}$  et  $\mathbf{C}_{\varphi}$  désignent respectivement la contrainte et le tenseur d'élasticité locaux. La fraction volumique  $f_{\varphi}$  (4) est estimée à l'aide d'une formulation statistique de Boltzmann. Cette formulation conduit à ce que la variante la plus probable sur les  $n$  variantes possibles soit celle qui minimise l'énergie libre (Daniel et al, 2008). Le paramètre A définit la largeur des distributions et rend compte du caractère stochastique de la transformation.

$$f_{\varphi} = \frac{e^{-AW_{\varphi}}}{\sum_{\varphi=1}^n e^{-AW_{\varphi}}} \quad (4)$$

### 3.1.2 Procédure de changement d'échelles

L'échelle intermédiaire est celle du grain. La variante est considérée comme une inclusion dans le grain supposé infini, ce qui permet de traiter ce problème comme un problème d'inclusion d'Eschelby. Le tenseur d'Eschelby ( $\mathbf{S}^E$ ) relie la déformation effective de la variante ( $\boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}$ ) à sa déformation « libre » de transformation ( $\boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr}$ ) dans l'équation (5). La transformation peut être décrite comme une transformation géométrique. La déformation de transformation est alors définie comme le tenseur de Green-Lagrange associé à la transformation (Battacharya, 2003). Nous utilisons par la suite une hypothèse de petite déformation pour l'expression des énergies.

La formulation de Hill permet de prendre en compte une contrainte macroscopique appliquée au grain. Le grain étant une entité où l'élasticité est homogène, l'équation (6) donne l'expression de la contrainte locale par variante  $\boldsymbol{\sigma}_{\varphi}$ .

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi} = \mathbf{S}^E : \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr} \quad (5)$$

$$\boldsymbol{\sigma}_{\varphi} = \boldsymbol{\sigma}_g + \mathbf{C}_{\varphi} : (1 - \mathbf{S}^E) : (\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr} - \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr}) \quad (6)$$

$\boldsymbol{\sigma}_g$  et  $\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr}$  définissent la contrainte et la déformation de transformation du grain. La détermination du tenseur d'Eschelby est rendue complexe car les variantes ne cessent d'évoluer lors de la transformation. L'hypothèse adoptée des déformations homogènes ( $\mathbf{S}^E = 0$ ) permet de contourner ce problème mais conduit à une surestimation des niveaux de contraintes. Un coefficient de correction « inélastique »  $\delta$  ( $0 < \delta < 1$ ) est donc adopté pour pondérer le tenseur de rigidité. La procédure de localisation modifiée est donnée par l'équation (7).

$$\boldsymbol{\sigma}_{\varphi} = \boldsymbol{\sigma}_g + \delta \mathbf{C}_{\varphi} : (\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr} - \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr}) \quad (7)$$

Compte tenu de l'hypothèse d'élasticité homogène par grain, la déformation de transformation du grain ( $\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr}$ ) correspond à une moyenne pondérée des déformations de transformation des variantes.

$$\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr} = \langle \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr} \rangle = \sum_{\varphi=1}^n f_{\varphi} \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr} \quad (8)$$

Une démarche classique d'homogénéisation et de localisation permet de relier l'échelle du grain à celle du polycristal (Daniel et al, 2008). Elle se base sur la distribution d'orientations de grains obtenue par EBSD.

La figure 2 reporte une simulation de refroidissement d'un VER de 420 grains. Le modèle de DSC est cohérent avec la mesure DSC expérimentale montrant l'apparition de la phase R intermédiaire. Les seuils de transformation sont respectés. Nous retrouvons en toute logique une distribution équiprobable des variantes de chaque phase en l'absence de contrainte extérieure.

## 3.2 Modèle de Diffraction

Le modèle reprend les conditions expérimentales. Le faisceau vient impacter le matériau avec une incidence de 50° par rapport à la normale. Le module de l'intensité diffractée dépend de la structure cristalline et est reprise du livre de Cullity (1994). Pour représenter la dispersion due à la variabilité de la microstructure (hétérogénéités locales, contraintes internes,...), nous modélisons les pics sous la forme de gaussiennes centrées sur la déviation angulaire. La texture est prise en compte avec un paramètre de correction selon la forme proposée par Cox et répertoriée dans la thèse de Sitepu (1991).

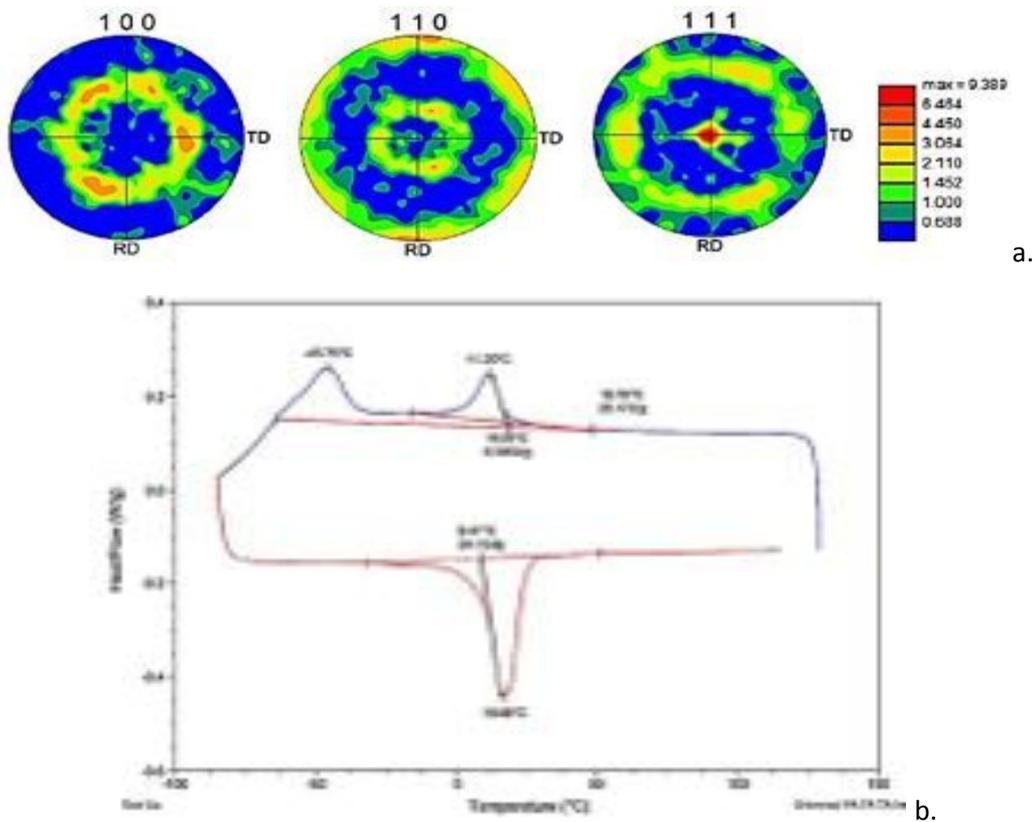


Figure 1. a. figures de pôles obtenues par EBSD b. DSC du matériau (mesure réalisée par V. Delobelle au SIMAP de Grenoble)

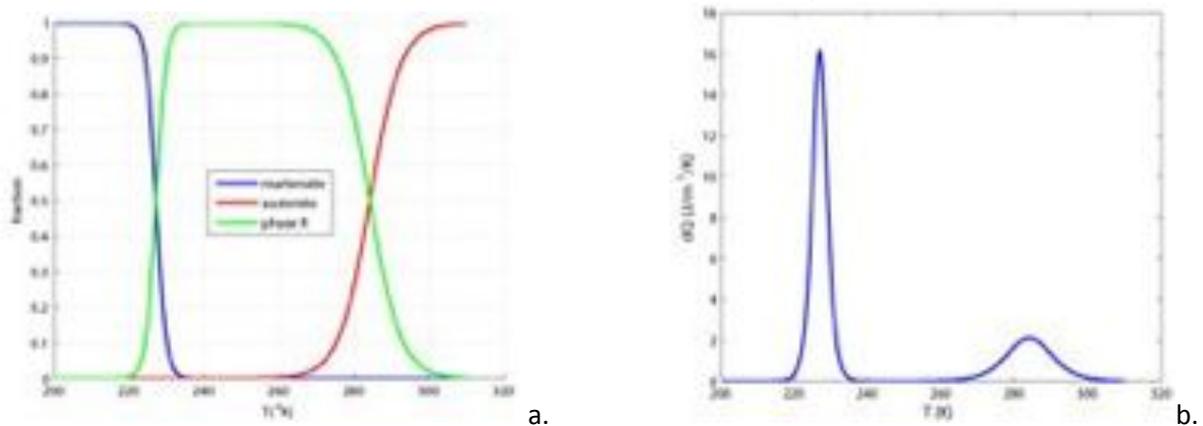


Figure 2. a. Evolution des fractions volumiques d'austénite, de phase R, et de martensite lors du refroidissement d'un VER de 420 grains b. DSC simulée associée à la transformation

## 4. RESULTATS DE DIFFRACTOMETRIE DES RAYONS X IN-SITU

### 4.1 Bilan des Mesures

Des mesures DRX sont réalisées lors d'un cycle de chauffage-refroidissement à contrainte nulle. Nous pouvons voir lors du refroidissement (figure 3.a) la nucléation de la phase R puis de la martensite à partir de la dégénérescence du plan principal d'austénite  $\{A110\}$ . L'évolution du diffractogramme lors du chauffage (non présentée ici) montre une hystérésis de transformation se traduisant par un retard à la transformation.

Les mesures DRX pendant une traction uniaxiale (résultats non reportés ici) à température ambiante montrent un passage apparemment direct de l'austénite à la martensite. En effet, la phase R présente une déformation de transformation beaucoup plus faible que celle de la martensite, ce qui se traduit par un couplage plus faible. Nous observons également une sélection privilégiée des variantes dont l'axe de déformation principal est proche de la direction de sollicitation en traction.

## 4.2 Validation en Température

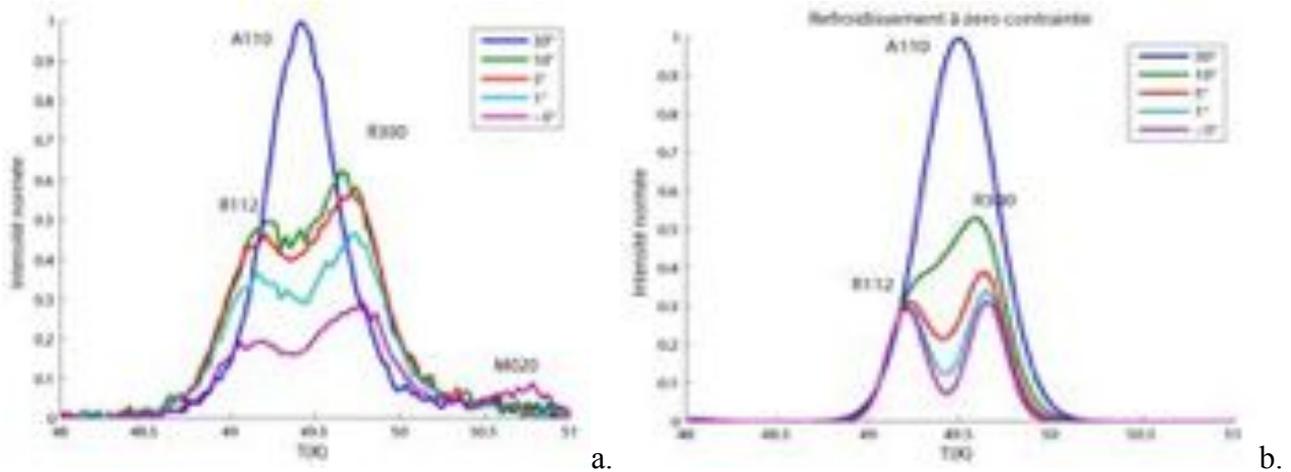


Figure 3. Diffractogramme du NiTi au cours d'un refroidissement ( $A \rightarrow M$ )  
a. Expérience b. Simulation

Le modèle a été validé qualitativement. En utilisant les paramètres répertoriés dans le tableau 1: il permet de rendre compte des phénomènes associés à la transition de phase (apparition de la phase R et uniformité de la transformation en température, sélection de variantes sous chargement mécanique) ; il permet de retrouver des profils de diffraction cohérents avec les mesures expérimentales. Le modèle est actuellement en cours de validation quantitative.

Tableau 1. Paramètres de simulation

Enthalpies de transformation $H_A - H_R = 34.7 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3}$ $H_A - H_M = 120.6 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3}$	Entropies de transformation $S_A - S_R = 0.12 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ $S_A - S_M = 0.50 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$	Autres paramètres $\delta = 1$ $A = 2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{J}^{-1}$	Pas de température -0.5K
---	---	--	-----------------------------

## 5. CONCLUSION

Ce travail de thèse jette les bases d'une approche expérimentale et de modélisation des phénomènes de transition de phase sous sollicitations thermomécaniques complexes (température, contraintes multiaxiales). Le modèle adopté est extensible à d'autres catégories d'AMF comme les AMF magnétiques. L'utilisation de la DRX in situ ouvre déjà des perspectives intéressantes ; notamment la possibilité d'explorer des chargements multiaxiaux complexes.

## REFERENCES

- Battacharya K., "Microstructure of Martensite: why it forms and how it gives rise to the shape memory effect?", *Oxford series on materials modelling*, (2003)
- Cullity B.D., "Elements of X-Ray Diffraction", *Addison-Wesley publishing company*, (1978) (second edition)
- A. Maynadier, D. Depriester, K. Lavernhe-Taillard, O. Hubert, "Thermo-mechanical description of phase transformation in Ni-Ti Shape Memory Alloy", *Procedia Engineering*, (2011) 10: 2208–2213
- L. Daniel, O. Hubert, N. Buiron, R. Billardon, *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, (2008) 56 : 1018–1042
- Sitepu, "Characterisation of preferred orientation in crystalline materials by X-ray powder diffraction", Thèse (1991)

# ANALYSE DES PROPRIETES MECANIQUES EN TRACTION DE FIBRES DE LIN APRES DIFFERENTS CYCLES THERMIQUES

C. Gourier, A. Le Duigou, A. Bourmaud, C. Baley *Laboratoire d'Ingénierie des Matériaux de Bretagne, Rue de Saint Maudé BP 92116, 56321 Lorient Cedex. Téléphone : 02 97 87 45 07, [clement.gourier@univ-ubs.fr](mailto:clement.gourier@univ-ubs.fr), [antoine.le-duigou@univ-ubs.fr](mailto:antoine.le-duigou@univ-ubs.fr), [alain.bourmaud@univ-ubs.fr](mailto:alain.bourmaud@univ-ubs.fr), [christophe.baley@univ-ubs.fr](mailto:christophe.baley@univ-ubs.fr),*

**Mots clés : Fibre de lin, Propriétés mécaniques, Température de process, Dégradation thermique, Comportement non linéaire**

## 1. INTRODUCTION

Les fibres végétales, telles le chanvre et le lin, sont considérées comme des alternatives potentielles à la fibre de verre pour le renforcement des matériaux composites. Le lin est l'une des plus intéressantes grâce à ses bonnes propriétés mécaniques et à sa disponibilité à l'échelle européenne (Faruk et al., 2012). La fibre élémentaire de lin peut elle-même être assimilée à un composite, au sein duquel des microfibrilles de cellulose partiellement cristallisés ( $\approx 70\%$ ) sont arrangées en spirales orientées à  $8-10^\circ$  (Bledzki and Gassan, 1999) par rapport à l'axe de la fibre. Ce « nano-renfort » cellulosique est imbriqué dans une matrice polysaccharidique amorphe faite d'hémicelluloses structurales et de pectines (Morvan et al., 2003). Cette composition biochimique et cette structure complexe ont des conséquences sur le comportement mécanique de la fibre. Dans le cadre d'essais de traction sur fibres élémentaires de chanvre et de lin, plusieurs auteurs (Aslan et al., 2011; Placet et al., 2012) ont identifié trois types de comportements : le premier purement élastique (TI), le second incluant une perte de linéarité (TII) et un troisième plus complexe ayant un comportement plastique et élastique (TIII). Nous avons étudié ici l'influence d'un cycle thermique représentatif d'un moulage par injection avec un polymère thermoplastique sur les comportements en traction des fibres de lin et les propriétés mécaniques qui y sont associées.

## 2. MATERIAUX & METHODES

### 2.1 Fibre de lin et traitements thermiques

Le lin, de variété Marilyn (2003), a été fourni par la Coopérative de Teillage de Lin de Neubourg CTLN (Normandie). Les fibres, teillées et peignées, ont été exposées à trois températures différentes (140, 190 et  $250^\circ\text{C}$ ) dans un four pendant 8 min. Ces cycles de température sont représentatifs d'un compoundage (3 min) suivi d'une injection (5 min) (Bourmaud and Baley, 2010) pour un polybutylène succinate, un poly lactique acide et un polyamide-11, trois polymères biosourcés et/ou biodégradables. Les traitements thermiques appliqués ont été réalisés sous air.

### 2.2. Tests de traction sur fibres élémentaires

Les tests ont été effectués sur des séries de 70 fibres à température et à humidité contrôlées ( $23^\circ\text{C}$ , 48%RH), après avoir imposé un des cycles thermiques. Les propriétés longitudinales en traction (module d'Young, allongement et contrainte à rupture) sont déterminées en accord

avec la norme NFT 25-501-2 qui tient compte de la complaisance de la cellule. La reprise en eau des fibres après traitement thermique étant très rapide et le nombre d'éprouvettes conséquent, nous avons laissé toutes les fibres retrouver un équilibre hygrométrique pour éviter la dispersion des résultats (Baley et al., 2005).

### 3. RESULTATS

#### 3.1 Analyse globale des différents comportements en traction

La Figure 1.a montre les courbes contrainte-déformation typiques obtenues pour les différentes fibres ainsi que leur distribution en fonction des traitements thermiques. Les courbes TI se caractérisent par une très faible différence entre le module d'Young calculé en à 0,2% d'allongement ( $E_{0.2\%}$ ) et en fin de courbe ( $E_{standard}$ ) selon la norme NFT 25-501-2. Pour les TII cette différence est beaucoup plus prononcée.

Le comportement TIII se caractérise par un seuil, une non-linéarité, qui s'explique par un réalignement microfibrillaire accompagné de ruptures de liaisons hydrogènes au sein de la matrice polysaccharidique dans la couche S2 (Burgert, 2006).

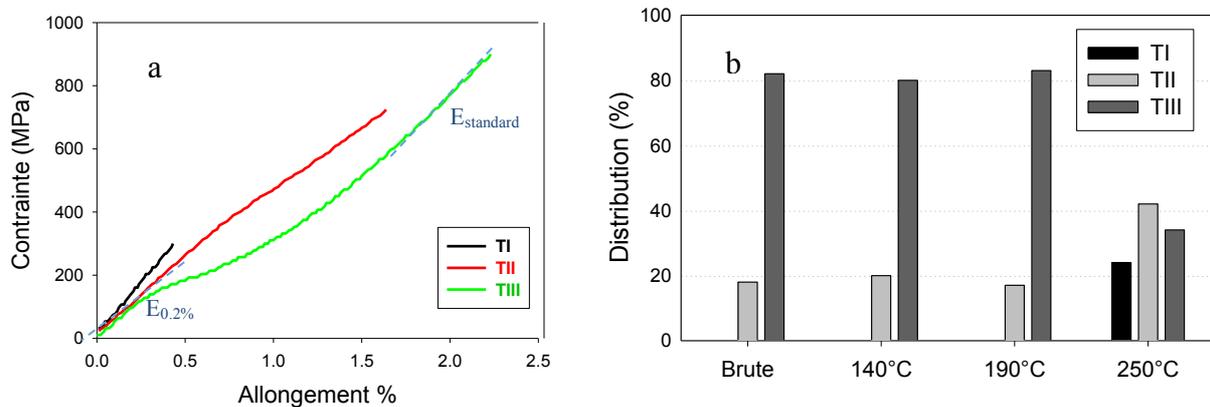


Figure 1. Courbes contrainte-déformation pour différents types de fibres unitaires de lin (a) ainsi que leur distribution selon le traitement thermique (b)

La distribution de ces comportements ne varie pas entre les fibres brutes et celles traitées à 140° et 190°C (Figure 1.b). Cependant, à 250°C le nombre de TIII diminue fortement en faveur des TII et des TI, ces dernières n'apparaissant qu'à cette température. La haute température limite le phénomène de réalignement microfibrillaire, par modification de la structure et/ou des interactions entre les composants.

#### 3.2 Analyse des propriétés mécaniques selon les comportements et les températures

On observe sur les Figures 2.b et 2.c que, jusqu'à 190°C, le module d'Young et la contrainte à rupture sont globalement identiques, même entre les TII et les TIII. L'observation des modules  $E_{0.2\%}$  révèle cependant que les TII ne sont pas des TIII ayant rompus prématurément comme le laisse à penser la Figure 2.d, mais des fibres différentes dans leur structure et/ou composition car le module  $E_{0.2\%}$  diffère nettement entre ces deux types de fibres.

Il apparaît également que les propriétés mécaniques usuelles (module d'Young mesuré selon la norme NFT 25-501-2, contrainte et allongement à la rupture) sont plus faibles pour les fibres traitées à 250°C. Les TI sont ici des fibres à l'origine de types TII et TIII ayant été

fragilisées par le cycle à haute température, leurs contraintes et allongements à rupture étant plus faibles. Globalement le traitement à 250°C implique un changement de comportement, en particulier par rapport au réalignement microfibrillaire des TIII brutes. C'est pourquoi des modifications de la structure de la fibre et des interactions entre les composants sont supposées.

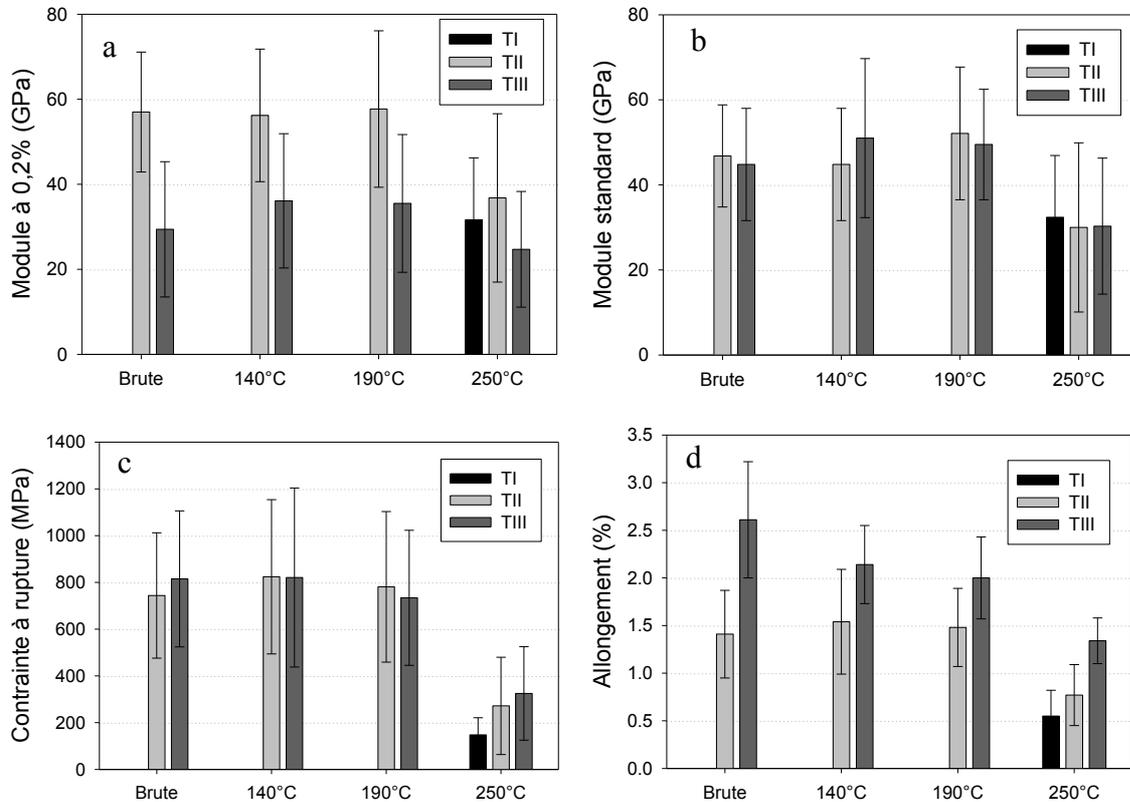


Figure 2. Evolution du module d'Young en début (0,2% de déformation  $E_{0.2\%}$ ) (a) et en fin de courbe ( $E_{standard}$ ), de la contrainte (c) et de l'allongement à la rupture (d) pour TI, TII et TIII, pour chaque température de traitement

### 3.3 Analyse du comportement mécanique lors du réalignement microfibrillaire

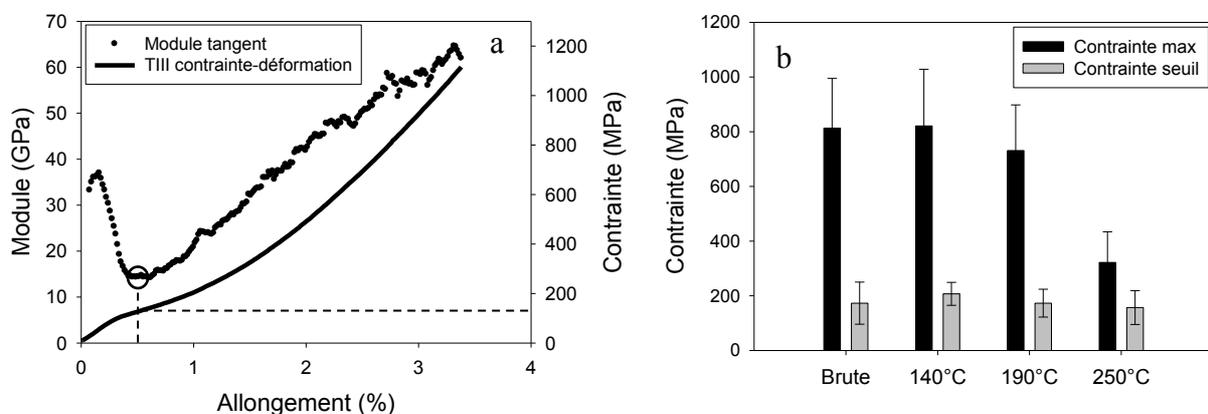


Figure 3. Courbe de contrainte-déformation des fibres de lin type TIII et la variation du module tangent (a) et les contraintes à rupture et au seuil (b) en fonction du cycle thermique

Pour compléter les observations précédentes, les courbes de contrainte-déformation de toutes les fibres TIII sont analysées au niveau de la perte de linéarité liée au réalignement microfibrillaire. Pour ce faire, le module tangent est représenté en fonction de l'allongement (Figure 3.a), la valeur seuil étant prise au changement de signe où les contraintes appliquées initient un relatif glissement des microfibrilles cellulosiques (Baley et al., 2012).

La Figure 3.b rassemble les valeurs de contrainte à rupture et de contrainte au seuil des fibres selon la température du cycle préalablement imposé. Les contraintes au seuil et donc la force de liaison entre la structure microfibrillaire et la matrice polysaccharide sont inchangées quel que soit le traitement thermique pour les fibres TIII. Cependant le rapport entre contrainte maximale et contrainte seuil chute pour le cycle à 250°C. Cela indique que, même si le seuil du réalignement microfibrillaire ne varie pas avec la température, le mécanisme de dissipation par glissement des fibrilles dans la matrice polysaccharide est grandement altéré.

#### 4. CONCLUSION

Les variations des propriétés mécaniques des fibres de lin ainsi que leurs comportements en traction peuvent s'expliquer par plusieurs phénomènes. Au-delà de la perte de matière que peut induire un cycle thermique, les propriétés structurales de la cellulose, des hémicelluloses et des pectines sont sensibles aux hautes températures (Gassan and Bledzki, 2001).

De plus, le phénomène d'hornification montre que certaines fibres végétale séchées en deçà d'un certain taux d'eau liée peuvent perdre de manière irréversible leurs propriétés (Diniz et al., 2004).

Aslan M., Chinga-Carrasco G., Sørensen B.F. et Madsen B., "Strength variability of single flax fibres", *J. Mater. Sci.*, **46**, 19, (2011), pp. 6344–6354.

Baley C., Le Duigou A., Bourmaud A. et Davies P., "Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites", *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, **43**, 8, (2012), pp. 1226–1233.

Baley C., Morvan C. et Grohens Y., "Influence of the Absorbed Water on the Tensile Strength of Flax Fibers", *Macromol. Symp.*, **222**, 1, (2005), pp. 195–202.

Bledzki A. & Gassan J., "Composites reinforced with cellulose based fibres", *Prog. Polym. Sci.*, **24**, 2, (1999), pp. 221–274.

Bourmaud A. & Baley C., "Effects of thermo mechanical processing on the mechanical properties of biocomposite flax fibers evaluated by nanoindentation", *Polym. Degrad. Stab.*, **95**, 9, (2010), pp. 1488–1494.

Burgert I., "Exploring the micromechanical design of plant cell walls", *Am. J. Bot.*, **93**, 10, (2006), pp. 1391–1401.

Diniz J.M.B.F., Gil M.H. et Castro J. M., "Hornification—its origin and interpretation in wood pulps", *Wood Sci. Technol.*, **37**, 6, (2004), pp. 489–494.

Faruk O., Bledzki A.K., Fink H.-P. et Sain M., "Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010", *Prog. Polym. Sci.*, **37**, 11, (2012), pp. 1552–1596.

Gassan J. & Bledzki A.K., "Thermal degradation of flax and jute fibers", *J. Appl. Polym. Sci.*, **82**, 6, (2001), pp. 1417–1422.

Morvan C., Andème-Onzighi C., Girault R., Himmelsbach D.S., Driouich A. et Akin D.E., "Building flax fibres: more than one brick in the walls", *Plant Physiol. Biochem.*, **41**, 11–12, (2003), pp. 935–944.

Placet V., Trivaudéy F., Cisse O., Gucheret-Retel V. et Boubakar M.L., "Diameter dependence of the apparent tensile modulus of hemp fibres: A morphological, structural or ultrastructural effect?", *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, **43**, 2, (2012), pp. 275–287.

# ANALYSE NUMERIQUE DE L'EVOLUTION DU FACTEUR D'INTENSITE DE CONTRAINTES AUX INTERFACES FIBRES RESINE D'UN COMPOSITE UD

M. Khaldi<sup>1,2,3</sup>, Vivet Alexandre<sup>1</sup>, Sereir Zouaoui<sup>2</sup>

*1 CIMAP – Alençon, Site Universitaire de Montfoulon, IUT Alençon, 61250 Damigny,*

*2 Laboratoire LSCMI Université des Sciences et Technologies Mohamed Bouafia d'Oran, Algérie*

*3 Université de Mascara, Algérie.*

*khaldi.mokhtar @unicaen.fr,*

*serzou@hotmail.com*

**Mots clés : Méthode des éléments finis/ Interface / Composite / Fissure.**

## 1. INTRODUCTION

L'influence des fissures est très importante dans les matériaux de pointe, tels que les composites renforcés par des fibres ou particules de verre et carbone qui sont connus, actuellement les fibres végétales sont en plein essor tel que les fibres Alfa. Le processus de conception de ces matériaux exige une meilleure compréhension des mécanismes de rupture. Une tâche importante est d'étudier en détail le comportement et la propagation des fissures le long ou perpendiculairement à l'interface.

Plusieurs études ont été conduites pour analyser l'interaction d'une fissure avec une interface (Cook et Erdogan, 1972). Le phénomène d'interaction d'une fissure avec une interface peut être étudié dans le cas d'une fissure normale ou inclinée à l'interface d'un matériau hétérogène de propriétés élastiques et aux ruptures différentes (Chen, 1994). Wang et Chen (1993) ont utilisé la photoélasticité pour déterminer la répartition des contraintes et l'intensité de contraintes d'une fissure perpendiculaire à l'interface. La présence d'une interface devant une fissure peut éviter la rupture catastrophique en favorisant sa déviation (E. Martin et al 1998), (K. Yilan. L.Hua, 2002). Le problème de la déviation d'une fissure par une interface est généralement analysé dans le cas d'une fissure orientée perpendiculairement à une interface en ne prenant en compte que les modes de déviation (E. Martin et al, 2002).

## 2. EFFET D'INTERACTION FISSURE INTERFACE.

L'étude du comportement des composites porte essentiellement sur les jonctions fibre – résine et tout particulièrement fibre alfa-époxy. On ne considère, dans cette étude, que les jonctions non réactives, c'est-à-dire que les deux constituants du matériau, ne réagissent pas chimiquement entre eux. Dans ce cas, il n'y a aucun composé chimique qui se forme à l'interface et la jonction est dite pure. Contrairement à la jonction pure, la jonction réactive est caractérisée par la formation de nouvelles phases à l'interface. Dans cette étude, nous nous sommes intéressés uniquement aux liaisons fibre alfa-époxy pure. Pour mettre en évidence l'effet d'interaction nous avons considéré le cas d'une fissure transverse perpendiculaire à l'interface. Nous avons constaté que lorsqu'une fissure se propage dans la matrice et s'approche de l'interface, cette interface est soumise, en particulier, à une contrainte qui lui est perpendiculaire.

## 2. 1. MODELE MICROMECHANIQUE

Le modèle micromécanique considéré est un volume élémentaire représentatif (VER) dans lequel la fibre alfa et la matrice en résine époxy sont parfaitement liées (figure 1). Le diamètre des fibres est de  $30\mu\text{m}$ , l'arrangement des ces dernières dans la matrice est de type carré et le taux de renfort varie de 40 % à 65 %. Le modèle présente une microfissure initiale de longueur  $a$  qui se propage, perpendiculairement au chargement appliqué, vers la fibre pour atteindre une longueur  $b$  se situant à l'interface fibre / matrice

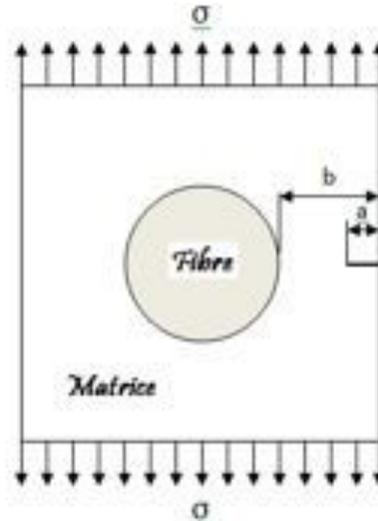
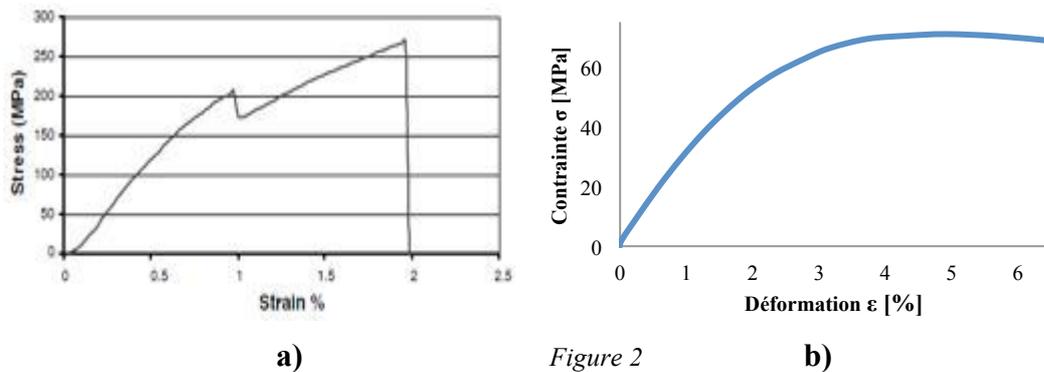


Figure 1. Section d'un volume élémentaire représentatif

## 2.2. MATERIAUX:

Les constituants du matériau sont des fibres alfa, supposées linéaire élastique isotrope et homogène (S. Ben Brahim et al, 2006), voir figure 2a ; par contre la résine a un comportement non linéaire, voir figure 2b. Les modules d'élasticité sont respectivement  $E_m = 3\text{GPa}$  et  $E_{f\text{moyen}} = 21.5\text{GPa}$



a) Courbe représentative de la loi de comportement contrainte- déformation de la fibre alfa.  
b) Courbe représentative de la loi de comportement contrainte-déformation de la résine époxy

tableau 1. Résumé des performances mécaniques des principales fibres naturelles utilisés dans le renfort des matériaux composites (P. Wambua et al, 2003)

Fibre	Densité ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	Déformation à la rupture (%)	Contrainte spécifique à rupture (MPa)	Module de Young Spécifique (GPa)
Alfa	1.4	1.5 – 2.4	134 – 220	13 – 17.8
Agave	1.4	20	350	4.2
Cotton	1.5	7 – 8	141 – 398	3.6 – 8.4
Jute	1.3	1.5 - 1.8	300 – 600	20
Lin	1.5	2.7 – 3.2	230 – 690	18
Ramie	1.5	3.6 – 3.8	266 – 630	42 - 86
Sisal	1.5	2 – 2.5	340 – 423	6 - 14
Bois	1.5	--	666	26

### 2.3. MAILLAGE ET CONDITIONS AUX LIMITES :

Le maillage du volume élémentaire représentatif (VER) a été effectué par des éléments isoparamétriques à 8 nœuds, la singularité en pointe de fissure est modélisée par des éléments spéciaux de type 1/4 comme le montre la figure 3. Des conditions aux limites mécaniques sont appliquées tout au long de la simulation.

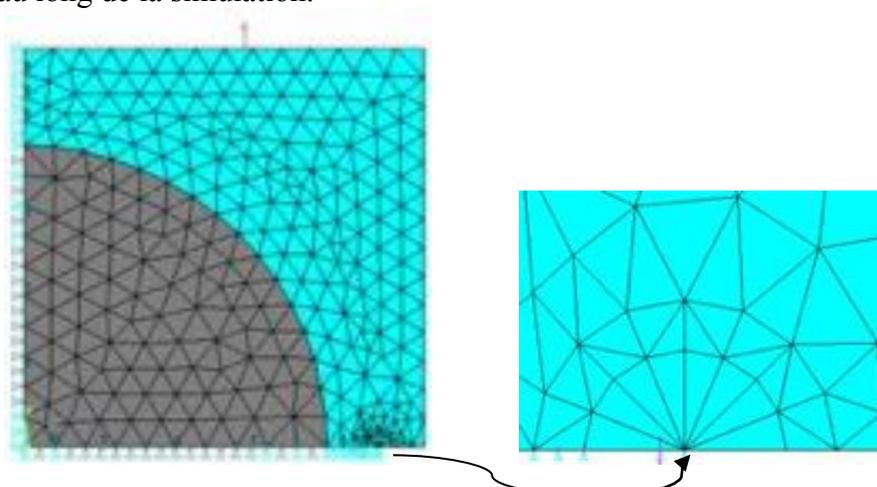


Figure 3. Maillage et conditione aux limites

### 3. DISCUSSION

Notre étude montre que la présence de l'interface dans un matériau composite modifie considérablement son comportement comparativement à un matériau homogène. Les résultats obtenus par la méthode des éléments finis sont illustrés sur la figure 4. Celle-ci montre la variation du facteur d'intensité de contraintes en fonction de la longueur de la fissure normalisée ( $a/b$ ) pour différentes fractions volumiques de fibres. Nous constatons que, plus la fissure se rapproche de l'interface, le facteur d'intensité de contrainte diminue, ce qui entraîne le ralentissement de la propagation et favorise la déviation des fissures. Pour un taux de renfort de 40% le facteur d'intensité de contrainte atteint un pic de  $6.05 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  qui dépasse le  $K_{IC}$  de la résine époxy qui est de l'ordre de  $3 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  et plus le taux de renfort augmente, le KI devient moins intense.

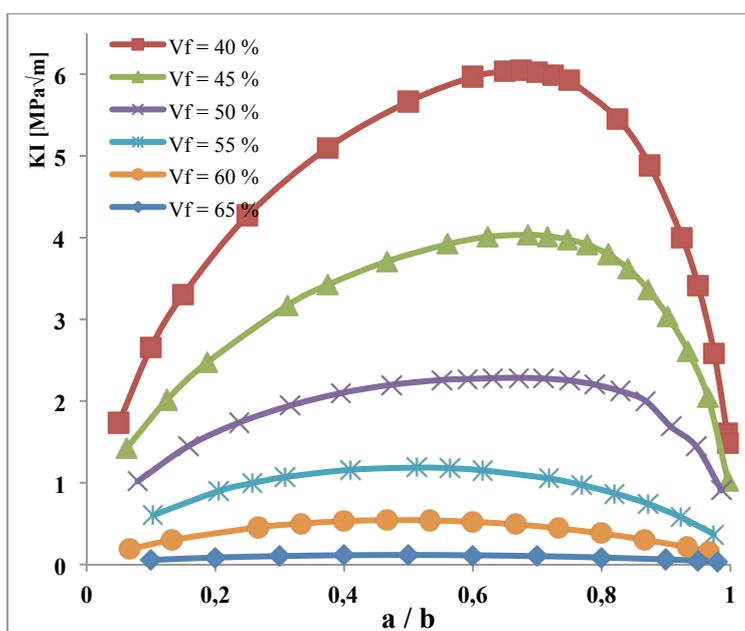


Figure 4. Evolution du facteur d'intensité de contrainte en fonction de  $a/b$

Ceci montre que la singularité du champ de contrainte en tête de cette fissure est complexe par rapport à celle d'une fissure dans un matériau homogène et isotrope. Dans ce cas, la fissure est soumise à des contraintes normales et de cisaillement.

La présence de l'interface dans un matériau composite engendre une singularité de puissance différente de celle d'un matériau homogène. Cette singularité dépend de la différence de rigidité des deux constituants du matériau.

La complexité de la singularité est responsable de la propagation de la fissure en mode mixte. Le facteur d'intensité de contrainte est fortement lié à la taille de la fissure, à la nature des constituants du matériau composite et de la répartition des contraintes normales et tangentielles au voisinage proche de la tête de la fissure.

#### 4. CONCLUSION

Cette étude a été conduite en vue de déterminer le facteur d'intensité de contrainte en mode I, l'analyse des résultats obtenus montre que :

quand la fissure atteint l'interface, sa géométrie est profondément modifiée, le rayon de courbure en tête de fissure augmente fortement, et par conséquent, le facteur de concentration de contrainte associé à cette fissure est fortement réduit.

Lorsqu'elle atteint l'interface, elle ne traverse généralement pas cette dernière et les renforts ne sont donc pas endommagés. Finalement, la fissure change de direction et suit l'interface.

En d'autres termes, au lieu d'une rupture brutale, on observe plutôt une décohésion, c'est-à-dire un décollement progressif entre les renforts et la matrice. L'interface joue donc le rôle de fusible et rend les composites plus ductiles et plus tenaces, c'est-à-dire plus résistants à la rupture, que leurs constituants élémentaires.

#### 5. REFERENCES

E. Martin, P. W. M Peters, D. Leguillon and J. M Quenisset. *Condition for Matrix Deflexion at an interface in ceramic matrix*. Composite Materials Science and Engineering A Vol. 250, pp. 291-302, 1998.

E. Martin. D. Leguillon. C. Lacroix. *Approche energetique pour l'étude des mécanismes de déviation d'une fissure par une interface*. Congrès Matériaux 2002.

F. Erdogan, T.S Cook, *Stress in bonded materials with a crack perpendicular to the interface*. International journal of Engineering Science.1972.

K. Yilan. L.Hua, *Investigation of near-tip displacement fields of a crack normal to and terminating at a biomaterial interface under mixed mode loading*. Engineering Fracture Mecanics. Vol 69, N°.18, pp. 2199-2208. 2002.

S. H. Chen. *A crack normal to and terminating at a bimaterial interface*. Engineering Fracture Mechanics. Vol. 19, N°4, pp .517-532, 1994.

S. H. Chen, T.C. Wang, Sharon Kao-Walter, *A crack perpendicular to the bimaterial interface in finite solid*. International Journal of Solids and Structures 40 (2003) 2731–2755

Sami Ben Brahim , Ridha Ben Cheikh, *Influence of fibre orientation and volume fraction on the tensile properties of unidirectional Alfa-polyester composite*. Composites Science and Technology 67 (2007) 140–147.

Wambua P, Ivens J, Verpoest I. *Natural fibers: can they replace glass in fibre reinforced plastics?* Comp Sci Technol 2003; 63:1259–64.

# ECO-MATERIAUX DANS L'AUTOMOBILE; L'IMPACT DES PARAMETRES D'ELABORATION SUR LES PROPRIETES MECANQUES DU COMPOSITE LIN/POLYESTERS INSATURES

**M. KHALFALLAH, B. ABBES, F. ABBES, Y.Q. GUO**, GRESPI/MPSE, Université de Reims Champagne-Ardenne, Campus Moulin de la Housse, BP 1039, 51687 REIMS Cedex 2, France. Téléphone : 03.26.91.87.01, Télécopie: 03.26.91.87.01, Adresse mail : [kh.moussa@live.fr](mailto:kh.moussa@live.fr), [boussad.abbes@univ-reims.fr](mailto:boussad.abbes@univ-reims.fr), [fazilay.abbes@univ-reims.fr](mailto:fazilay.abbes@univ-reims.fr), [yq.guo@univ-reims.fr](mailto:yq.guo@univ-reims.fr)  
**V. MARCEL, A. DUVAL**, Faurecia Interior Systems, 08210 Mouzon Cedex, France

## 1. INTRODUCTION

Conformément aux nouvelles directives européennes concernant la réduction du taux de CO<sub>2</sub> émis par les véhicules et pour répondre d'avantage aux exigences des constructeurs automobile, l'équipementier Faurecia et ses partenaires (LINEO NV, URCA et PSA) se sont engagés dans la réalisation d'un matériau sandwich léger et résistant. Les peaux composites sont composées d'un renfort innovant à base de fibres de lin longues et unidirectionnelles appelé Flaxtape (rubans de lin). Il est constitué principalement d'un mélange de fibres techniques et élémentaires issues d'un processus de traitement mécaniques permettant de les extraire de la plante et de les nettoyer de tout résidu collé en surface. L'assemblage de ses fibres en parallèle permet de former des rubans de grammage contrôlé, l'adhésion entre les fibres est assurée par un processus de pulvérisation en vapeur d'eau permettant de réactiver le ciment pectique en surface des fibres. Ce processus permet d'aboutir à un voile de lin unidirectionnel ne contenant aucune filature en trame, facilement maniable et prêt à passer à l'étape d'imprégnation.

La particularité de la chaîne de production des équipements automobile réside dans le temps de leur cycle de production qui doit être très court pour des raisons économiques. Le choix de la matrice s'est porté donc sur une résine acrylique thermodurcissable de type polyesters insaturés (Acrodur® de BASF) offrant un temps de réticulation inférieur à 3 minutes. Acrodur® est une résine acrylique aqueuse à base d'un acide polycarboxylique et d'un polyalcool (Fig. 1), ne contenant ni phénol ni formaldéhyde.

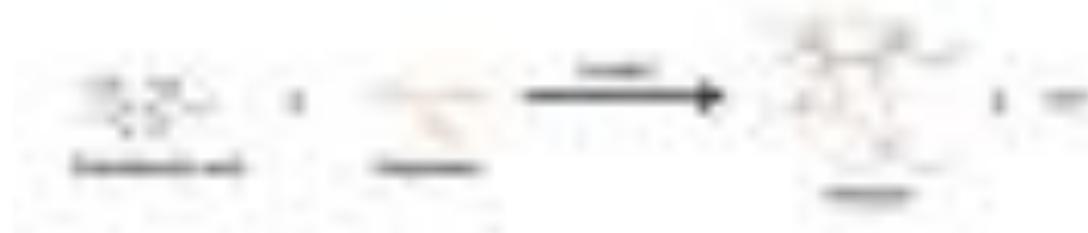


Figure 1: Réaction de réticulation de l'Acrodur®.

L'objet du travail présenté dans ce document est principalement d'élaborer et de caractériser les peaux composites qui constitueront le sandwich final. Nous présenterons les résultats de caractérisation permettant de comprendre l'influence des paramètres entrant en jeu dans leur élaboration pour optimiser la qualité et les propriétés des produits.

## 2. CARACTERISATION DU VOILE DE LIN (FLAXTAPE)

Dans la démarche à suivre pour réaliser le matériau sandwich, il est essentiel dans un premier temps d'étudier la répétabilité du comportement mécanique du renfort « flaxtape ». Pour ce faire, une campagne d'essais de traction longitudinale a été menée sur un échantillonnage d'éprouvettes de géométrie variable (Fig. 2).

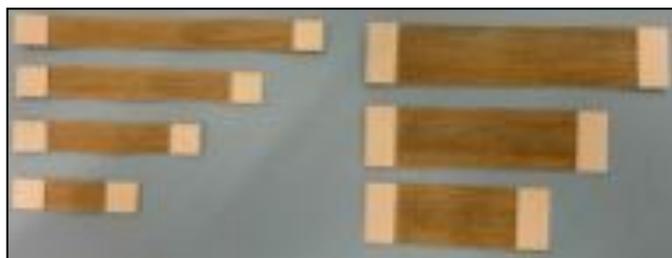


Figure 2: Eprouvettes de flaxtape testées en traction.

Cette procédure a été mise en place pour tenir compte de la discontinuité et de l'hétérogénéité de la surface du voile de lin, dues à la manière dont il est fabriqué, notamment la présence de zones d'enchevêtrement et d'interruption des faisceaux de fibres de lin dans le voile. La variabilité de la composition chimique (Baley, 2006) et de la structure des fibres de lin (longueur et diamètre des fibres) (Lamy, 2002 et Charlet, 2007) est prise en compte dans cette procédure.

Les modules spécifiques calculés ( $E/\rho$ ) ont été représentés en fonction des dimensions des éprouvettes dans la Fig. 3. Ces résultats montrent que les éprouvettes de dimensions 25x200 mm<sup>2</sup> donnent le moins de dispersions dans les résultats de traction du voile de lin.

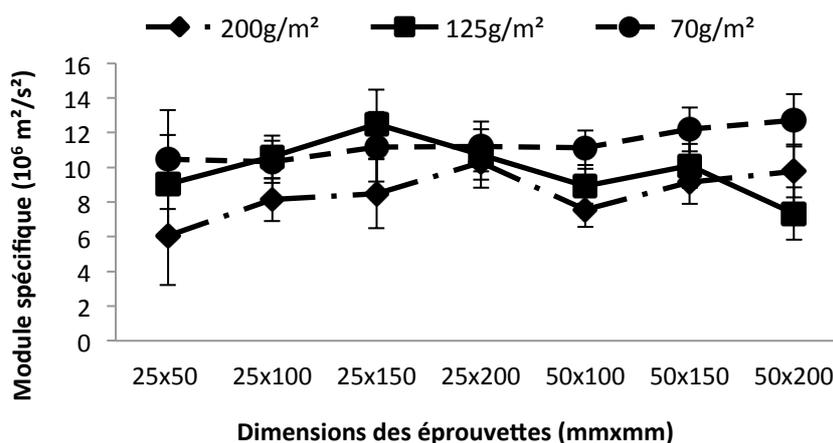


Figure 3: Module spécifique des éprouvettes de Flaxtape.

### 3. ELABORATION DES PEAUX COMPOSITE DU SANDWICH

Pour élaborer les plaques composites, nous avons décidé de fixer le grammage et de travailler dans un premier temps avec le Flaxtape 120g/m<sup>2</sup>. Les paramètres du processus d'élaboration (procédés d'imprégnation, entrefers, cycle de réticulation et dégazage) ont été établis de manière à optimiser la densité des plaques composites et réduire leur taux de porosité.

Les Flaxtapes ont été imprégnés en adoptant deux méthodes : a) Imprégnation par pulvérisation au pistolet sur une face et deux faces : c'est le processus installé sur la ligne d'imprégnation industrielle ; b) Imprégnation à l'aide d'un rouleau : cette technique d'imprégnation permet de réaliser des échantillons prototypes.

Le cycle de réticulation de la résine a été déterminé et optimisé par une étude menée avec la calorimétrie différentielle à balayage (DSC). Pour éviter toute dégradation des fibres,

leur intervalle de stabilité thermique a été déterminé par l'analyse thermogravimétrique (ATG).

### 3.1 Corrélation entre le taux de résine et l'entrefer de la presse de thermocompression

Différents essais de thermocompression ont été réalisés sur des plaques UD composées de 3 plis de voile de lin imprégnés d'Acrodur® en faisant varier le taux massique de résine et l'entrefer pour de la presse de thermocompression pour obtenir une qualité optimale des plaques (densification et état de surface). Les résultats obtenus sont résumés dans la Fig. 4 qui montre une dépendance linéaire entre l'entrefer de la presse et le taux massique de fibres de résine.

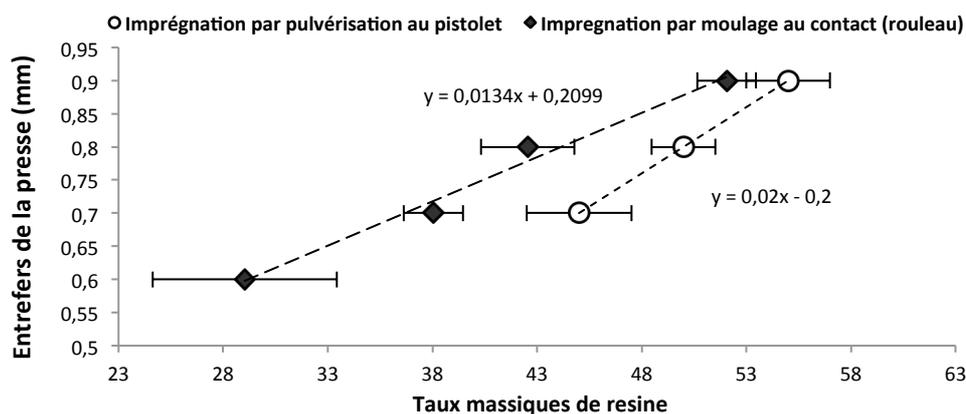


Figure 4: Corrélation entre le taux de résine l'entrefer de la presse de thermocompression.

### 3.2 Influence des techniques d'imprégnation sur le module de traction

Les plaques composites obtenues avec les deux méthodes d'imprégnation ont été caractérisées en traction suivant la norme ISO-527 selon les directions 0°, 90° et 45° pour en déterminer le module élastique. La déformation a été mesurée par le système de mesure optique sans contact ARAMIS. Les résultats obtenus sont représentés sur le graphe de la Fig. 5. Les plaques obtenues par imprégnation au rouleau présentent le module de traction le plus élevé, dû à la bonne distribution de la résine sur le voile. En effet, l'imprégnation au pistolet pulvérise la résine en surface qui réticule sous forme dispersée ; alors que la technique d'imprégnation au pistolet permet à la résine acrylique de pénétrer mieux dans le voile de lin. Elle permet ainsi de remplir les parties poreuses donnant un pré-imprégné très homogène en termes de répartition de la résine. La liaison entre les entités du composite est fortement améliorée dans ce cas et procure aux plaques composites de bonnes propriétés mécaniques par le transfert des contraintes de la matrice aux fibres [1].

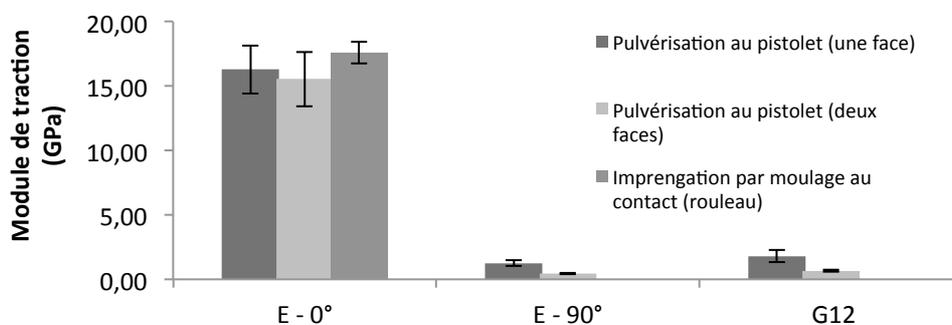


Figure 5: Modules de traction du composite lin/Acrodur®.

### 3.3 Influence de la masse volumique sur le module de traction

Pour étudier l'impact de la masse volumique sur les propriétés mécaniques, plusieurs plaques constituées de 3 plis de flaxtape 120g/m<sup>2</sup> et de l'Acrodur® ont été réalisées en faisant varier l'entrefer. Les résultats obtenus montrent que le module de traction longitudinal est proportionnel à la masse volumique (Fig. 6). Pour des masses volumiques optimales au voisinage de  $0.9 \pm 0.04$  g/cm<sup>3</sup>, le module d'Young longitudinal est égale à  $18 \pm 2$  GPa. Il n'a pas été possible de densifier au-delà de  $0.9$  g/cm<sup>3</sup> car des problèmes de délaminage des plis et de formation de cloques sur les plaques ont été rencontrés. Cela pourrait être lié à l'évaporation de l'eau contenue dans la résine et absorbée par les fibres lors du processus d'imprégnation.

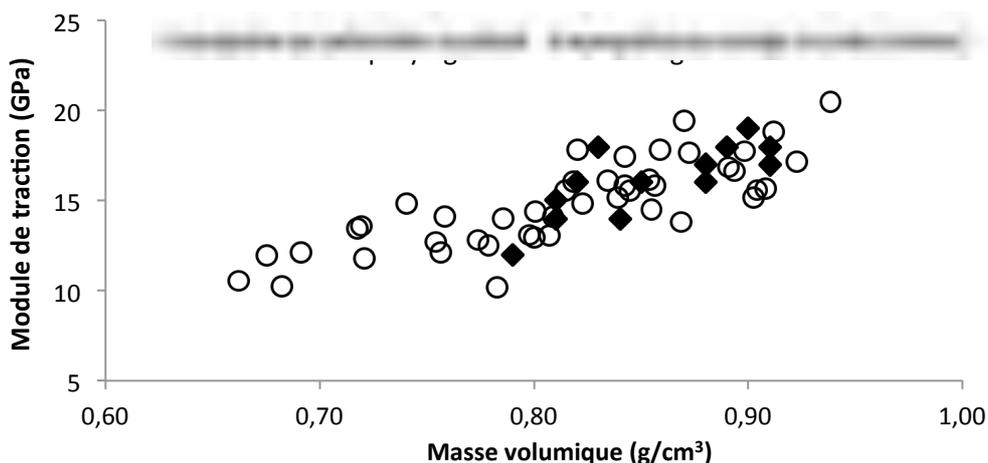


Figure 6: Module de traction en fonction de la masse volumique.

## 4. CONCLUSION

Ce travail a permis d'établir une procédure de caractérisation d'un voile sec de lin permettant d'obtenir des résultats avec le minimum de dispersion malgré la variabilité du lin. L'étude de différents procédés d'imprégnation de lin par l'Acrodur® a permis de régler d'optimiser l'imprégnation sur une ligne industrielle. L'entrefer entre les plateaux chauffant de la presse de thermocompression s'avère un paramètre important et permet d'obtenir des plaques composites bien densifiées et « sans défauts ». Ce paramètre est proportionnel au taux de résine contenu dans le pré-imprégné. L'influence de la masse volumique sur les performances mécaniques des plaques a été mise en évidence : le module d'Young est proportionnel à la masse volumique du composite lin/Acrodur®.

## REFERENCES

- Baley C., "Influence of chemical treatments on surface properties and adhesion of flax fibre-polyester resin", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **37**, (2006), pp. 1626-1637.
- Lamy C.B., "Influence of fiber defects on the stiffness properties of flax fibers-epoxy composite materials", *Journal of materials science letters*, (2002), pp. 1211- 1213.
- Charlet K., "Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **38**, (2007), pp. 1912-1921.

# MESURE DES COURBES DE DISPERSION DES ONDES GUIDÉES SE PROPAGEANT LE LONG D'UNE STRUCTURE CYLINDRIQUE MICROMÉTRIQUE

**H. KHELFA**, P.Picart, *LUNAM Université du Maine, Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine (LAUM), CNRS UMR 6613, Avenue Olivier Messiaen, 72085 Le Mans cedex 9, France. Téléphone : 06 99 08 96 62, Télécopie : 02 43 83 37 94 Adresse(s) électronique(s) : haithem.khelfa.etu@univ-lemans.fr, pascal.picart@univ-lemans.fr*

C. Poilâne, *Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique, (CIMAP Alençon), UMR 6252 ENSICAEN-UCBN-CNRS-CEA, IUT d'Alençon, 61250 Damigny, France. Téléphone : +33 (0)233 808 516, Adresse(s) électronique(s) : christophe.poilane@unicaen.fr*

D. Mounier, *LUNAM Université du Maine, Institut des Molécules et des Matériaux du Mans (IMMM), CNRS UMR 6283, Avenue Olivier Messiaen, 72085 Le Mans cedex 9, France. Téléphone : +33(0)2 43 83 39 76, Télécopie : 02 43 83 37 94 Adresse(s) électronique(s) : denis.mounier@univ-lemans.fr*

**Mots clés : Composite - Ultrasons laser - Modes guidés - Courbes de dispersion - Fibres micro-métriques**

## 1 INTRODUCTION

Actuellement, l'étude de la propagation des modes guidés fait l'objet d'un regain d'intérêt, notamment dans le cadre du contrôle non destructif (CND) en vue d'évaluer les constantes élastiques d'un objet à partir de la détermination des courbes de dispersion des modes guidés. Cependant, l'étude approfondie sur des diverses caractéristiques de propagation d'ondes, en fonction des paramètres géométriques du matériau est nécessaire pour une large gamme d'applications. En particulier, pour prédire le comportement d'un matériau composite renforcé par des fibres, il est essentiel d'en connaître les propriétés élastiques. Dans ce but, nous avons mis en œuvre une méthode d'évaluation des constantes élastiques basée sur la mesure des courbes de dispersion des modes guidés se propageant le long d'une fibre élémentaire. La technique des ultrasons laser est utilisée pour exciter et mesurer sans contact les vibrations ultrasonores de la fibre. L'excitation est réalisée par un faisceau laser impulsionnel bref qui est focalisé sur la fibre. Les déplacements radiaux de la surface de la fibre sont mesurés par une sonde laser interférométrique focalisée sur la fibre. La géométrie de la zone d'excitation laser détermine l'étendue spectrale de l'excitation des modes guidés, à la fois dans le domaine fréquentiel  $\omega$  et le domaine des vecteurs d'ondes  $k$ . L'échantillonnage des mesures vibratoires à la fois dans le domaine temporel  $t$  et spatial  $z$  permet le calcul des courbes de dispersion  $\omega(k)$  par une transformée de Fourier rapide (FFT) à deux dimensions sur les données spatio-temporelles. Pour obtenir précisément les fréquences  $\omega$  des modes guidés pour une valeur de  $k$  donnée, la méthode du "faisceau de matrice" (ou Matrix-Pencil) est utilisée. Cette dernière méthode a l'avantage de permettre l'évaluation directe de l'amortissement et de l'amplitude des modes guidés. Les courbes de dispersion mesurées sont comparées aux courbes calculées, en utilisant soit une méthode analytique dans le cas d'un cylindre plein soit une méthode par éléments finis dans le cas d'une fibre de section elliptique ou arbitraire. La comparaison entre les courbes de dispersion calculées et mesurées est satisfaisante dans le cas d'un fil en aluminium de  $33 \mu m$  de diamètre, utilisé comme échantillon test.

## 2 DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DES COURBES DE DISPERSION

### 2.1 Dispositif optique d'excitation et détection sans contact d'ondes mécaniques guidées par une fibre cylindrique libre

Le dispositif expérimental d'acoustique microseconde, pour la mesure de courbe de dispersion d'une fibre élémentaire, peut être représenté schématiquement sur la Fig.1. Dans nos expériences (Mounier, et al., 2014), l'excitation de la fibre est réalisée au moyen d'un laser impulsionnel à la longueur d'onde de  $1064 \text{ nm}$  (laser de pompe, Fig.1) délivrant, à une cadence  $4 \text{ kHz}$ , des impulsions de durée  $0,6 \text{ ns}$  avec une énergie de quelques micro-joules ( $10 \mu J$ ). Le laser pompe est focalisé sur la surface de la fibre au moyen d'une lentille cylindrique ( $f = 700 \text{ mm}$ ) qui permet de former une tache elliptique de dimensions approximatives  $4 \mu m \times 72 \mu m$ , alignée le long de l'axe de fibre, les vibrations sont engendrées en régime thermo-élastique c'est-à-dire sans altération de la surface de l'échantillon. La

source d'excitation (faisceau pompe) permet de générer plusieurs modes guidés, qui se propagent alors dans la structure étudiée (fil d'aluminium de diamètre  $D = 32,7 \mu m$ ). La zone d'excitation peut être se translaturée le long de l'axe de fibre en changeant l'orientation du miroir dichroïque ( $T \simeq 100\%$  à  $532 \text{ nm}$  et  $R \simeq 100\%$  à  $1064 \text{ nm}$ ) avec basculement vertical. A l'aide d'une vis de réglage vertical, on translate le spot de pompe selon l'axe  $z$  de la fibre avec un pas d'échantillonnage d'environ  $\Delta z \approx 40 \mu m$  par rapport au spot de la sonde qui est fixe au cours de la mesure. Dans notre expérience, l'excitation des modes guidés le long de l'axe de la fibre est limité à  $\pm 500 \mu m$  de part et d'autre de la sonde. Les déplacements radiaux de la surface de la fibre sont ensuite mesurés ponctuellement à l'aide d'un faisceau de sonde d'un interféromètre de Michelson homodyne stabilisé. Un laser CW de longueur d'onde  $532 \text{ nm}$  est focalisé sur la fibre à l'aide d'une lentille asphérique ( $\times 20$ ,  $f = 8 \text{ mm}$ ) pour former un spot gaussien de rayon  $\omega_y$  (rayon du waist), centré sur la ligne de pompe. Au cours de la mesure, la tache de sonde est fixe, seule la tache de pompe (zone d'excitation) est déplacée le long de l'axe de la fibre.

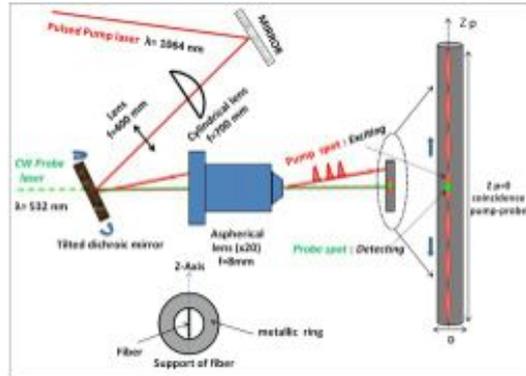


FIG. 1 – Détermination expérimental des courbes de dispersion des modes guidés : le spot de sonde est fixe, seul le spot de pompe est déplacé le long de l'axe de la fibre

Comme l'axe de la fibre ne coïncide pas exactement avec l'axe de translation de la tache de pompe, il est nécessaire de recentrer légèrement le faisceau de pompe sur l'axe de la fibre avant chaque mesure. Pour cela, on maximise le signal détecté en ajustant la position du miroir dichroïque en basculement horizontal. Le signal détecté est filtré et enregistré par un oscilloscope numérique. Chaque signal est échantillonné avec une fréquence  $f_e = 2 \text{ GHz}$  pendant une durée d'acquisition  $\Delta t = 5 \mu s$ . La résolution temporel spectrale en fréquence est de l'ordre de  $0.2 \text{ MHz}$ . La géométrie du spot de pompe

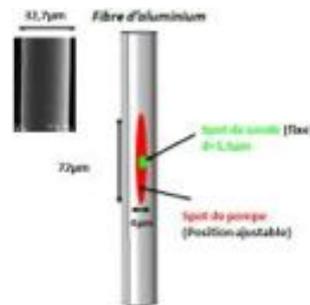


FIG. 2 – Configuration des faisceaux optiques (pompe-sonde) sur un fil élémentaire d'aluminium

le long de l'axe de la fibre détermine l'ensemble des modes guidés qui sont excités dans le domaine spectral  $(k, \omega)$ . Cependant, la configuration de dimension  $2\omega_y \times 2\omega_z$  ( $\omega_y$  et  $\omega_z$  représentent les rayons du spot) de la source d'excitation dépend toujours du diamètre de la fibre testée. La figure 2 illustre les dimensions des spots pompe et sonde sur un fil d'aluminium de diamètre  $32,7 \mu m$  où la dimension de pompe est  $2\omega_y \times 2\omega_z = 72 \mu m \times 4 \mu m$  et le spot de sonde est  $2\omega_y = 1,5 \mu m$ . Dans notre méthode, on peut générer des ondes guidées jusqu'à une fréquence de  $1 \text{ GHz}$ . Pourtant, l'échantillonnage spatio-temporel  $U(t_i, z_j)$  avec  $i = 1 \dots 20$  et  $j = 1 \dots 10000$ , dont l'échantillonnage temporel est plus grand par rapport à l'échantillonnage spatial.

## 2.2 Analyse des données expérimentales

La figure 3 illustre le signal temporel de déplacement mesuré en fonction de la position  $z$  du faisceau pompe par rapport au faisceau de la sonde. A partir d'une série de signaux temporels, enregistrés pour

chaque position spatiale, une fonction  $U(t, z)$  dépendant du temps et de l'espace est constituée. L'expression de déplacement mesuré résulte de la superposition de modes guidés qui s'exprime par la relation suivante :

$$U(z, t) = \sum_{\mu=1}^M \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{U}^{\mu}(k) \cdot \exp\{i(\omega_{\mu}(k)t - kz)\} d\left(\frac{k}{2\pi}\right) + cc \quad (1)$$

avec  $\omega_{\mu}(k) = \omega'_{\mu}(k) + i\omega''_{\mu}(k)$  la pulsation complexe et  $cc$  désigne le complexe conjugué.

Un mode guidé particulier désigné par l'indice  $\mu$  et de vecteur d'onde  $k$ . On suppose que le nombre de mode  $\mu$  est limité à  $M$  modes.

La propagation d'un modes guidé  $(\mu, k)$  le long de l'axe du cylindre est déterminée par la relation de dispersion  $\omega'_{\mu}(k)$ , où  $k$  est le vecteur d'onde de propagation le long du cylindre et  $\frac{\omega'_{\mu}(k)}{2\pi}$  est la fréquence du mode guidé. La relation de dispersion d'un mode guidé détermine à la fois sa vitesse de phase  $v_{\mu}^{\varphi}(k) = \frac{\omega'_{\mu}(k)}{k}$  et sa vitesse de groupe  $v_{\mu}^g(k) = \frac{d\omega'_{\mu}(k)}{dk}$ . Le temps caractéristique d'amortissement du mode guidé est  $\tau_{\mu}(k) = \frac{1}{\omega''_{\mu}(k)}$ .

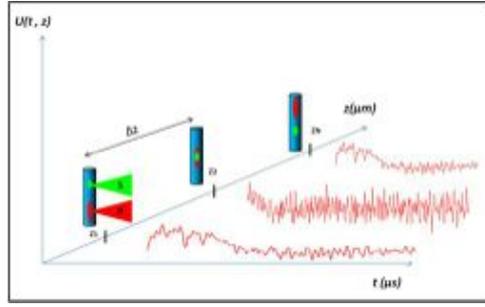


FIG. 3 – Signal de déplacement en fonction de la position  $z$  de pompe/sonde

En appliquant une transformation de Fourier rapide sur l'équation (Eq.1) dans le domaine d'espace  $z$  on obtient l'équation suivante :

$$\tilde{U}(k, t) = TF_z[U(z, t)] = \sum_{\mu=1}^M \tilde{U}^{\mu}(k) \exp[i\omega_{\mu}(k)t] + cc \quad (2)$$

Ensuite, on applique une transformation de Fourier rapide dans le domaine temporel sur l'équation (Eq.2) on obtient l'équation suivante :

$$\hat{U}(k, \omega) = TF_t\{TF_z[U(z, t)]\} \quad (3)$$

A partir de l'équation (Eq.2), on peut obtenir directement la pulsation complexe  $\omega_{\mu}(k)$  et l'amplitude  $\tilde{U}^{\mu}(k)$  avec la méthode de "Matrix-Pencil" (Schöpfer et al., 2013) et donc le temps d'amortissement  $\tau_{\mu}(k)$  du mode guidé. L'algorithme de "Matrix-Pencil" nous permet d'obtenir précisément les pulsations  $\omega'_{\mu}(k)$  des modes guidés en fonction du vecteur d'onde  $k$ .

### 3 COURBES DE DISPERSION DE QUELQUES MODES GUIDÉS

La figure 4 illustre les courbes de dispersion de quelques modes guidés se propageant le long d'un fil d'aluminium déterminé par un calcul analytique d'après les solutions de l'article de D. Gazis (Gazis, 1959). Nous considérons le cas d'un fil d'aluminium de structure cylindrique excité par une ligne laser focalisée le long de sa génératrice. Dans la méthode analytique utilisée, les paramètres d'entrée sont respectivement : module d'Young égal à  $E = 69,6 \mu m$ , coefficient de poisson  $\nu = 0,35$  et masse volumique  $\rho = 2700 kg/m^3$ . Les vitesses des ondes acoustiques longitudinales et transversales pour ce matériau sont données respectivement par les relations suivantes :

$$c_L = \sqrt{\frac{E(1 - \nu)}{\rho(1 + \nu)(1 - 2\nu)}} \quad (4)$$

$$c_T = \sqrt{\frac{E}{2\rho(1+\nu)}} \quad (5)$$

Les courbes de dispersion, calculées sont superposées à une image en niveaux de gris de l'amplitude  $|\hat{U}(k,\omega)|$  calculée à partir des données expérimentales. Les dimensions des pixels de l'image sont directement liées à l'échantillonnage temporel et spatial de la fonction  $U(z,t)$  (Eq.1) sur les images de la Fig.4, l'amplitude nulle est représentés par des pixels blancs et les pixels noirs sont ceux où  $|\hat{U}(k,\omega)|$  est maximum. Pour chaque valeur de  $k$  de l'image, la méthode de "Matrix-Pencil" (Hua et Sarkar, 1990) permet de calculer les fréquences  $f_\mu(k) = \frac{\omega'_\mu(k)}{2\pi}$ . Ces fréquences sont représentées par des croix rouges qui sont globalement en coïncidence avec les pixels gris (Fig.4).

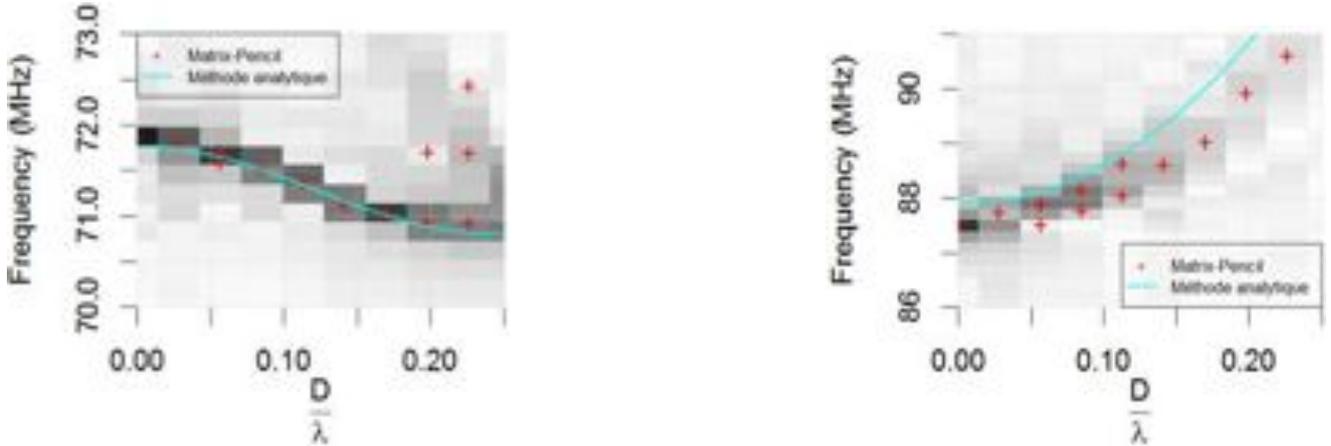


FIG. 4 – Courbes de dispersion d'un fil d'aluminium de diamètre  $D = 32,7 \mu m$  par méthode analytique et par méthode de "Matrix-Pencil" : mode de Rayleigh  $R(m = 2, n = 0)$  à gauche et mode de galerie à échos  $WG(m = 1, n = 1)$  à droite.  $(\frac{D}{2\pi})k = \frac{D}{\lambda}$  : vecteur d'onde a dimensionné

La comparaison entre les courbes de dispersion calculées et mesurées est très satisfaisante dans le cas d'un fil en aluminium de  $32,7 \mu m$  de diamètre.

#### 4 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Nous avons considéré la génération d'ultrasons par une ligne laser dirigée le long de l'axe d'une structure cylindrique en vue de calculer les courbes de dispersion des ondes guidées. La source acoustique est alors localisée à la surface du matériau en régime thermoélastique. L'étude expérimentale présentée a permis de mettre en évidence la propagation d'ondes guidées le long d'un fil d'aluminium.

Une perspective intéressante consiste maintenant à étendre cette méthode sur des fibres de carbone, fibre de kevlar et fibres végétales (fibre de lin en particulier). L'exploitation de données expérimentales, comme les courbes de dispersion des modes guidés par des fibres permet d'envisager l'évaluation des constantes élastiques de ces fibres.

#### REFERENCES

- Mounier D., Poilâne C., Khelfa H.& Picart P., "Sub-gigahertz laser resonant ultrasound spectroscopy for the evaluation of elastic properties of micrometric fibers.", *Ultrasonics*, **54**, (2014), pp. 259-267.
- Schöpfer D.& al., "Accurate determination of dispersion curves of guided waves in plates by applying the matrix pencil method to laser vibrometer measurement data.", *CEAS Aeronautical Journal*, **1**, (2013), pp. 1-8.
- Gazis D., "Three-dimensional investigation of the propagation of waves in hollow circular cylinders.I Analytical foundation,II Numerical results.", *J. Acoust. Soc. Am*, **31-35**, **5**, (1959), pp. 568-578.
- Hua Y., Sarkar T.K., "Matrix pencil method for estimating parameters of exponentially damped undamped sinusoids in noise.", *IEEE Transactions on Acoustics Speech and Signal Processing*, **38**, **5**, (1990), pp. 814-824.

# INFLUENCE DES PARAMETRES DE MISE EN ŒUVRE SUR LES PROPRIETES MICROSTRUCTURALES ET MECANIQUES D'UN COMPOSITE UNIDIRECTIONNEL LIN/POLYAMIDE 11.

Y. LEBaupin, TQ. Truong Hoang, M. Chauvin, ESTACA, PARC UNIVERSITAIRE LAVAL CHANGE RUE GEORGES CHARPAK BP 76121, 53 061 Laval Cedex 9. Téléphone : 02 43 59 53 90, Télécopie : 02 43 59 47 38, Adresse(s) électronique(s) : yann.lebaupin@estaca.fr, thuy-quynh.truong-hoang@estaca.fr, michael.chauvin@estaca.fr

F. Touchard, Institut Pprime, ENSMA, BP40109, 86961 FUTUROSCOPE CEDEX. Téléphone : 05 49 49 82 28, Télécopie : 05 49 49 82 38, Adresse électronique : fabienne.touchard@ensma.fr

A. Beigbeder, CEMCAT, PARC UNIVERSITAIRE ET TECHNOLOGIQUE, RUE LEONARD DE VINCI, 53810 CHANGE. Téléphone : 02 22 06 15 17, Télécopie : 02 43 56 34 26, Adresse électronique : abeigbeder@cemcat.fr

**Mots clés : Thermocompression, tests mécaniques, lin, Polyamide 11, analyse microstructurale**

## 1. INTRODUCTION

Les matériaux composites à base de fibres de lin présentent des caractéristiques intéressantes et sont de plus en plus étudiés [Truong et al., 2013]. L'objectif de cette étude est d'optimiser les paramètres de mise en œuvre d'un éco-composite à base de fibres de lin et d'une résine polyamide 11 (PA 11). Cette optimisation s'articulera autour de la corrélation entre les paramètres de mise en œuvre, les propriétés microstructurales, et les comportements mécaniques de l'éco-composite. Dans un premier temps, une analyse microstructurale (thermique et rhéologique) permettra l'identification des paramètres de mise en œuvre (temps de maintien et température) de la matrice thermoplastique, afin de cerner les cycles de thermocompression de l'éco-composite. Ensuite, plusieurs paramètres seront testés afin de produire différentes configurations. Enfin, les caractéristiques mécaniques et microstructurales des différentes configurations des composites seront déterminées.

## 2. PROTOCOLE EXPERIMENTAL

### 2.1 Mise en oeuvre

Le procédé utilisé pour mettre en œuvre les composites est le moulage par thermocompression (Figure 1). Il s'effectue par compression entre deux plaques chaudes à des pressions pouvant atteindre 150 à 300 bars pour remplir le moule et permet la mise en œuvre de pièces relativement épaisses (2.5 mm). Le moule est chauffé puis refroidi par deux thermorégulateurs, régulant matrice et poinçon. Ce procédé est le moins énergivore parmi les procédés de mise en œuvre des composites à fibres continues [Lucas et al., 2007]. Ce dernier a l'avantage de ne soumettre le composite à aucune autre forme de dégradation à l'exception de la température et de la pression. Les composites seront dans notre cas élaborés par une superposition de poudre et de fibre de lin.

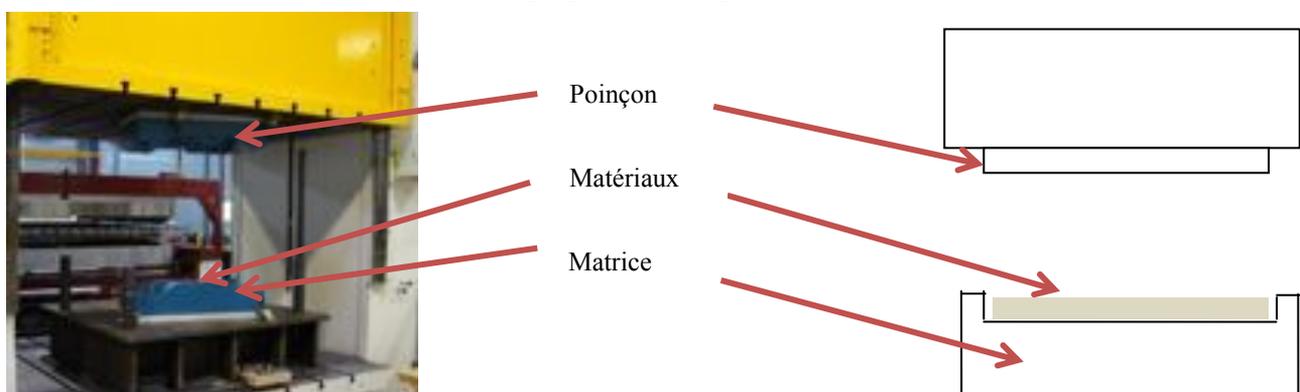


Figure 1. Moule de thermocompression

## 2.2 Analyses microstructurales et essais mécaniques

Les propriétés thermiques de la matrice seule et des composites sont caractérisées par analyse enthalpique différentielle (DSC) TA Instruments Q20. La température de transition vitreuse ( $T_g$ ), la température de fusion ( $T_m$ ), la température de cristallisation ( $T_c$ ), l'enthalpie de fusion ( $\Delta H_m$ ) et le taux de cristallinité ( $\chi$ ) seront déterminés pour la matrice seule ainsi que pour chacun des composites.

Les essais de traction monotone sont réalisés sur une machine de traction INSTRON 5884 équipée d'une cellule d'effort de 150KN. La déformation sera mesurée à l'aide de jauges de déformation extensométriques. A l'issue des essais, le module d'Young, la contrainte à la rupture ainsi que la déformation seront déterminés.

Les propriétés de mécanique dynamique des composites sont mesurées par une DMA Q800 en mode de flexion à encastrement simple. Les éprouvettes sont soumises à des sollicitations sinusoïdales à une fréquence de 1Hz et à une vitesse de chauffe de 2°C/minute pour des températures comprises entre 25 et 100°C. Ces essais permettent de déterminer le module de stockage ( $E'$ ) et le facteur de perte ( $\tan \delta$ ) des éco-composites.

Les faciès de rupture sont ensuite analysés avec un microscope électronique à balayage Neoscope JCM5000 ; ils sont observés après métallisation. Des mesures de taux de porosités ont également été réalisés sur chaque échantillon grâce à la technique de la poussée d'Archimède.

## 3. CONFIGURATIONS DE MISE EN OEUVRE

Les différents paramètres de thermocompression à optimiser sont [Mieck et al., 1996 ; Miao et al., 2011] :

- La pression de maintien ;
- La température ;
- Le temps de maintien.

Ce dernier est plus difficile à contrôler pendant la mise en œuvre, il sera fixé à cinq minutes.

Le composite est composé par quatre couches de fibres de lin et cinq couches de résine PA11. Le pourcentage massique de fibre est de 50%, soit un pourcentage volumique en fibre de 44%.

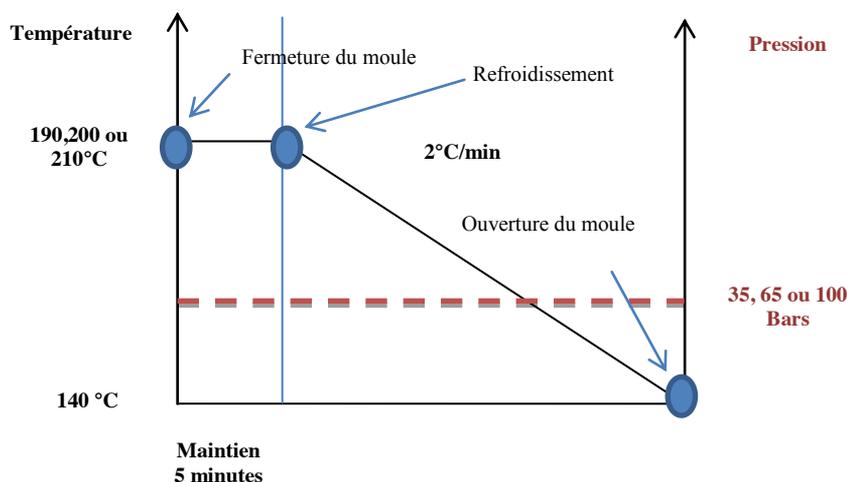


Figure 2. Paramètres de mise en œuvre par thermocompression

La figure 2 décrit les paramètres de mise en œuvre. Lorsque la température de consigne est atteinte (190, 200 ou 210°C), les couches sont installées dans le moule puis pressées pendant toute la durée de l'essai. Le refroidissement se fait à 2°C/minute, le démoulage est réalisé à 140°C lorsque le polymère a bien cristallisé.

La figure 3 résume les différents paramètres testés pour la réalisation des plaques.

	Température (°C)	Pression (Bars)	Temps de Maintien (minutes)
<b>Config 1</b>	190	35	5
<b>Config 2</b>	190	65	5
<b>Config 3</b>	190	100	5
<b>Config 4</b>	200	65	5
<b>Config 5</b>	210	65	5
<b>Config 6</b>	200	35	5

Figure 3. Paramètres de thermocompression étudiés

Ces paramètres de mise en œuvre peuvent influencer notablement les propriétés et les caractéristiques interfaciales des matériaux composites [Destaing, 2012], c'est pourquoi ils doivent être choisis judicieusement afin d'obtenir un composite avec des propriétés optimales.

#### 4. RESULTATS

Les tests mécaniques en traction ont permis de déterminer le module d'Young, la contrainte et la déformation à la rupture des différentes configurations (figure 4). De plus, une plaque en lin/Epoxy a été réalisée par RTM en conservant le même taux volumique de fibres, elle nous servira de référence.

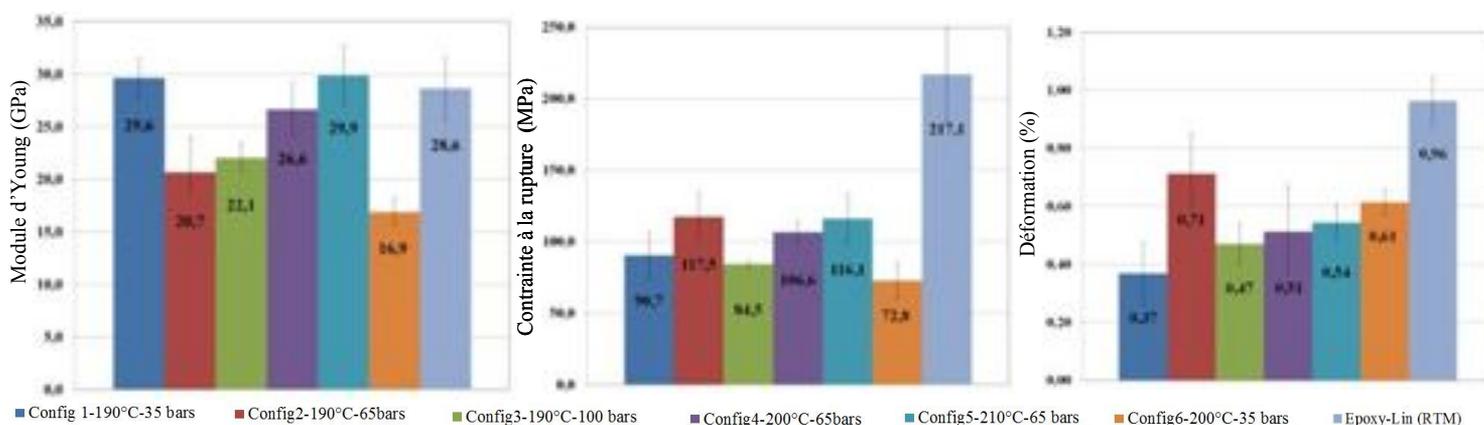


Figure 4. Evolution des propriétés mécaniques des composites

Une configuration optimale semble se dégager : la configuration 5, soit 210°C et 65bars. Cette tendance se confirme avec les résultats de DMA et les observations par MEB (Figures 5 et 7).

En effet, le module de stockage est plus important pour la configuration 5 ce qui est en adéquation avec les résultats mécaniques. En revanche, le facteur d'amortissement est plus important pour la configuration 6 ce qui peut être attribué à une interface fibre/matrice médiocre.

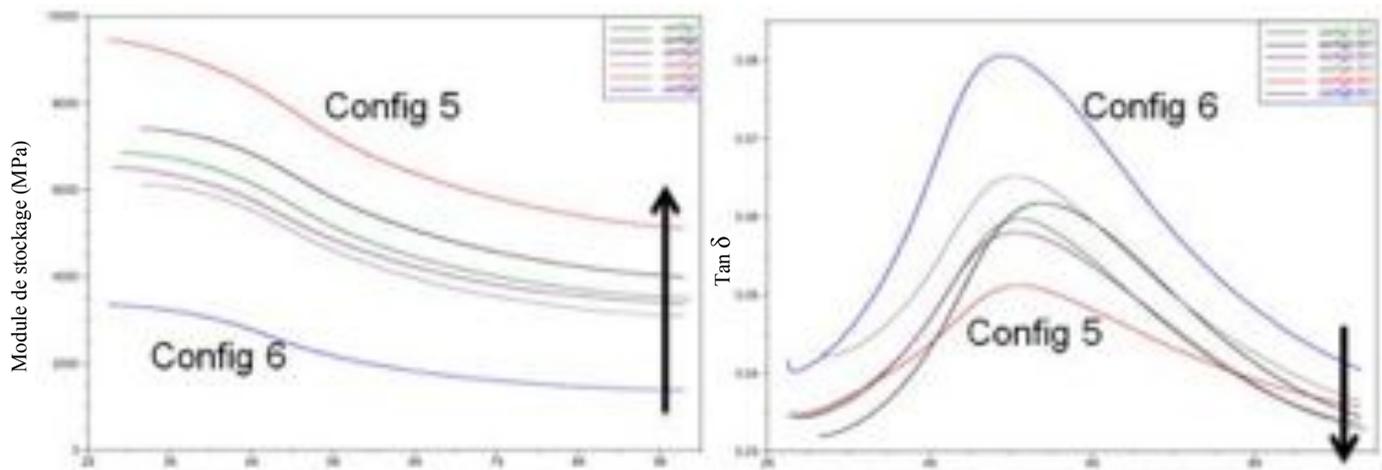


Figure 5. Evolution du module de stockage ( $E'$ ) et du facteur de perte ( $\tan\delta$ ) des composites

La figure 6 présente les taux de porosité mesurés dans les différentes configurations. On constate que la configuration 6 a le plus fort taux de porosité, et la configuration 5 le plus faible. Cela peut directement être relié aux résultats de DMA (figure 5), et aux observations des faciès de rupture (figure 7).

Configuration	Température (°C)	Pression (Bars)	Taux de porosités Vp (%)
1	190	35	11±1
2	190	65	12±1
3	190	100	11
4	200	65	11
5	210	65	8
6	200	35	26±2

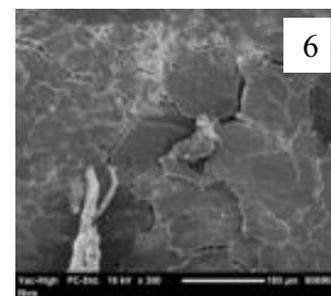
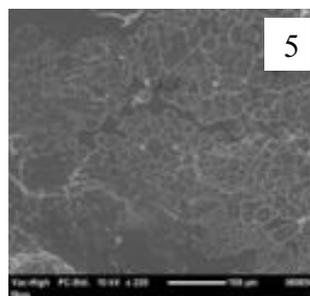


Figure 6. Taux de porosités des composites

Figure 7. Faciès de rupture des éprouvettes de configurations 5 et 6

## 5. CONCLUSION

Des tests mécaniques en traction ont permis de déterminer le module d'Young, la contrainte et la déformation à la rupture des différentes configurations. Suite à ces résultats, une configuration semble se dégager, correspondant à des paramètres de thermocompression de 210°C et 65bars. Cette tendance se confirme avec l'analyse des propriétés thermiques et microstructurales.

## REFERENCES

- Destaing F. "Contribution à l'étude du comportement mécanique des matériaux composites biosourcés lin/PA11 élaborés par thermocompression", *Thèse de doctorat*, CRISMAT, Caen, (2012).
- Lucas P., Zanella G., "Mise en oeuvre des composites TP-Compounds à fibres continues", *Techniques de l'ingénieur*, AM.5236, (2007).
- Miao M., Shan M., "Highly aligned flax/polypropylene nonwoven preforms for thermoplastic composites", *Composites Science and technology*, 71, 15, (2011), pp. 1713-1718.
- Mieck K.P., Lutzkendorf R., Reussman T., "Needle-punched hybrid nonwovens of flax and PP fibers-Textile semiproducts for manufacturing of fiber composites", *Polymer composites*, 17, 6, (1996), pp. 873-878.
- Truong Hoang T.Q, Fabienne Touchard, "Non-woven flax fiber reinforced polypropylene: mechanical properties in static and low velocity impact behaviours", *Polymers&Polymer Composites*, 21, 5, (2013).

## PROPRIETES MECANIQUES D'UNE FIBRE DE LIN: MISE EN RELATION DU COMPORTEMENT EN TRACTION AVEC LA COMPOSITION DES PAROIS

A. Lefeuvre, S.C.A Teillage du plateau du Neubourg, Route de Louviers, BP 19, 27 110 Le Neubourg, 02 97 87 45 07, Adresse électronique : [anaele.lefeuvre@gmail.com](mailto:anaele.lefeuvre@gmail.com)

A. Bourmaud, C. Baley, LIMATB, Université de Bretagne Sud, rue de saint Maudé, BP 92 116, 56 321 Lorient Cedex. Téléphone : 02 97 87 45 53, Adresse(s) électronique(s) : [alain.bourmaud@univ-ubs.fr](mailto:alain.bourmaud@univ-ubs.fr), [christophe.baley@univ-ubs.fr](mailto:christophe.baley@univ-ubs.fr)

C. Morvan, PBS, UMR 6270 CNRS, Université de Rouen, Bd Maurice de Broglie, 76 821, Mont Saint Aignan Cedex. Téléphone : 02 35 14 66 94, Adresse électronique : [claudine.morvan@univ-rouen.fr](mailto:claudine.morvan@univ-rouen.fr)

**Mots clés : Fibres de lin, propriétés mécaniques, courbe de déformation, comportement non-linéaire, composition des parois.**

### 1. INTRODUCTION

Depuis les années 2000, de nombreuses études ont été menées sur l'utilisation des fibres végétales pour des applications composites. Parmi les fibres végétales, les fibres de lin sont apparues comme étant une bonne alternative aux fibres de verre (Baley, 2002). En effet, le lin est une ressource renouvelable dont les propriétés mécaniques des fibres peuvent égaler celle des fibres de verre avec un module d'Young et une contrainte à rupture variant entre 46 et 72 GPa et entre 741 et 1454 MPa, respectivement (Lefeuvre et al., 2013 ; Bourmaud et al., 2010; Charlet et al., 2007, Baley, 2002). Cependant, la particularité des fibres de lin est que leur structure est composée d'une paroi primaire fine puis d'une paroi secondaire épaisse contenant elle-même différentes couches (e.g. S1, S2, S3). La couche S2 est la principale, représentant 80% de la section de la fibre, et est renforcée par des microfibrilles de cellulose (Gorshkova and Morvan, 2005; Gorshkova et al., 2003) orientées à 10° par rapport à l'axe principal de la fibre (Figure 1)

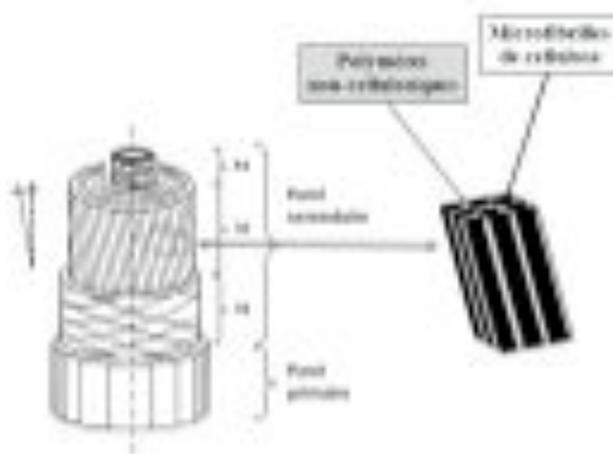


Figure 1 : Représentation schématique de l'organisation des parois d'une fibre de lin

Les microfibrilles de la couche S2 ont été décrites comme interagissant fortement avec des hémicelluloses, extraites avec une solution alcaline (EOH) et baignant dans une matrice de pectines incrustantes, extraites avec un acide (EH) (Figure 2).

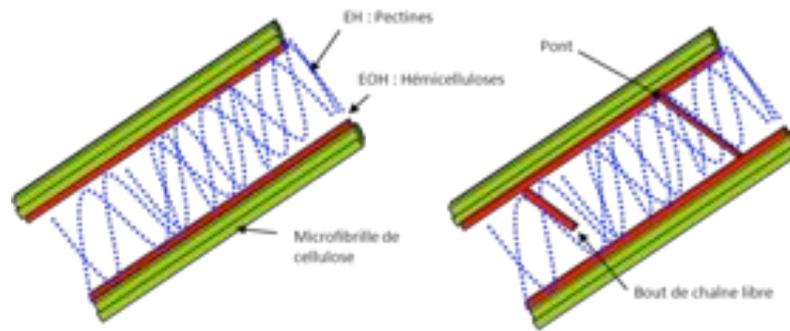


Figure 2 : Représentation schématique de la structure chimique de la couche S2 (Bourmaud et al., 2013).

La structure d'une fibre de lin est assimilable à un composite composé de plusieurs couches. Cela implique que lors d'une sollicitation, la réponse en traction est complexe de part la présence de multiples interfaces entre les différentes couches au sein même de la fibre. Plusieurs auteurs ont déjà identifié la courbe de déformation caractéristique des fibres de lin comme étant composée d'une première partie non-linéaire suivie par une deuxième partie linéaire (Andersons et al., 2005; Baley, 2002;2012; Charlet et al., 2007). Cependant, d'autres auteurs relevèrent également un comportement linéaire ou bien un comportement composé de deux parties linéaires distinctes (Aslan et al., 2011; Baley et al., 2012). Le comportement en traction d'une fibre de lin est donc difficile à définir à partir d'un seul type de courbe de déformation. Trois types de courbe de déformation sont observés et sont nommés type 1 (TI : linéaire), type 2 (TII : deux parties linéaires distinctes) et type 3 (TIII : non-linéaire) (Figure 3).

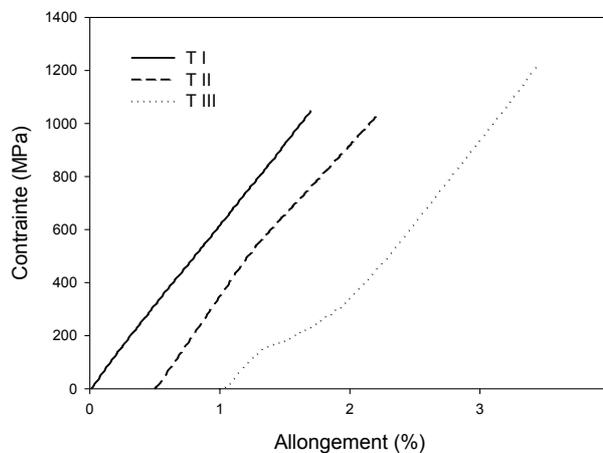


Figure 3: Les courbes de déformation TI, TII et TIII.

Une première partie est consacrée à l'étude de la relation entre les propriétés mécaniques et la proportion de chaque type de réponse en traction. Une deuxième partie permet d'approfondir la compréhension du TIII, étant le type majoritaire quand les propriétés mécaniques en tensions sont fortes, avant de terminer par la mise en relation du comportement TIII avec l'analyse de la composition des parois.

## 2. ANALYSE DES COMPORTEMENTS EN TRACTION

Le tableau 1 regroupe les propriétés mécaniques des lots de fibres de la variété Marilyn issus de lins ayant tous été cultivés dans la même zone géographique (plateau du Neubourg, Eure, France). choisies dans le cadre de cette étude. Pour chacune des années 2009 et 2010 ont été choisis un lot

aux propriétés mécaniques élevées (M1-2009 et M1-2010) et un lot aux propriétés mécaniques modérées (M2-2009 et M2-2010).

Tableau 1 : Propriétés mécaniques moyennes des lots de fibres de lin étudiés avec,  $E_n$  : Module d'Young moyen mesuré selon la norme XP T25-501-2,  $\sigma_r$  : contrainte à rupture,  $\epsilon_r$  : allongement à rupture.

Année de culture	Nom	Nombre de fibres testées	$\varnothing$ des fibres testées ( $\mu\text{m}$ )	$E_n$ (GPa)	$\sigma_r$ (MPa)	$\epsilon_r$ (%)
2009	M1_2009	59	13,6 ( $\pm 2,5$ )	56,2 ( $\pm 11,9$ )	1197 ( $\pm 452$ )	2,2 ( $\pm 0,7$ )
2009	M2_2009	44	14,4 ( $\pm 3,2$ )	50,3 ( $\pm 12,2$ )	860 ( $\pm 295$ )	1,8 ( $\pm 0,6$ )
2010	M1_2010	45	16,2 ( $\pm 4,2$ )	60,5 ( $\pm 19,2$ )	1128 ( $\pm 471$ )	2,1 ( $\pm 0,5$ )
2010	M2_2010	41	15,1 (3,0)	48,9 ( $\pm 11,5$ )	936 ( $\pm 263$ )	2,1 ( $\pm 0,5$ )

Pour chaque lot, plus de 40 fibres furent sollicitées en traction, puis la courbe de déformation est classée selon son type TI, TII ou TIII (Tableau 2).

Tableau 2 : Répartition des trois différents types de comportement en traction selon les lots

Nom	TI (%)	TII (%)	TIII (%)
M1_2009	12	27	<b>61</b>
M2_2009	38	<b>44</b>	18
M1_2010	14	18	<b>68</b>
M2_2010	<b>40</b>	29	31

Il est intéressant de constater que les lots aux propriétés mécaniques les plus élevées (M1\_2009 et M1\_2010) correspondent aux lots possédant la proportion en comportement T3 la plus importante.

### 3. ETUDE DU COMPORTEMENT NON LINEAIRE DE TYPE 3

L'évolution du module tangent en fonction de l'allongement s'est révélé être caractéristique du comportement TIII. Dans la première partie de la courbe, le module tangent instantané (nommé  $E_{T3}$ ) diminue jusqu'à un minimum (nommé  $E_{1T3}$ ) situé entre 0,2% et 1,3% de déformation selon les fibres. Puis,  $E_{T3}$  augmente jusqu'à un plateau avant la rupture (Figure 4).

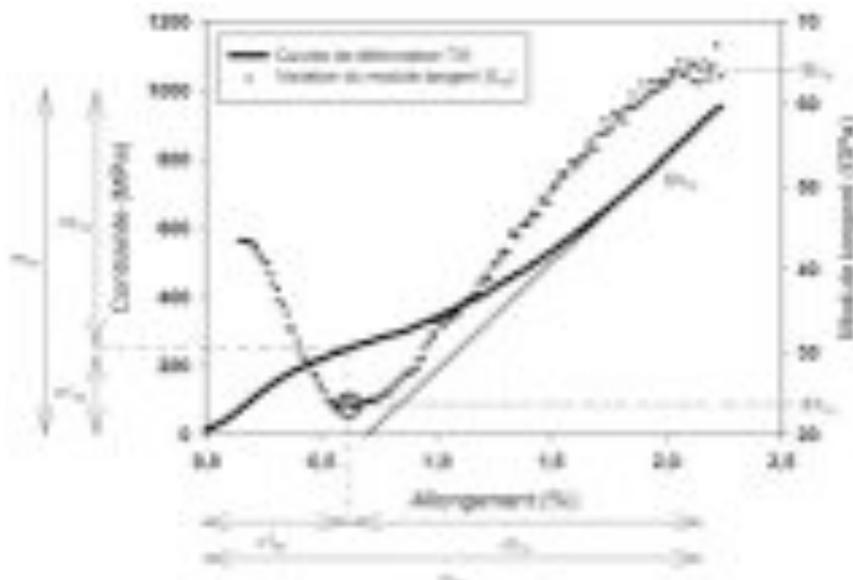


Figure 4 : Courbe de déformation du comportement TIII mis en relation avec l'évolution du module d'Young en fonction de l'allongement

Le minimum  $E1_{T3}$  a permis de séparer la courbe de déformation TIII en deux parties distinctes correspondant sur la figure à  $(\epsilon1_{T3}, \sigma1_{T3})$  et  $(\epsilon2_{T3}, \sigma2_{T3})$ . Plus la première partie  $(\epsilon1_{T3}, \sigma1_{T3})$  est courte, plus les propriétés mécaniques à rupture sont élevées avec un facteur de corrélation (R) égal à 0,79 pour la contrainte à rupture et à 0,99 pour le module d'Young à rupture.

#### 4. DISCUSSION SUR LA MISE EN RELATION DE L'ETUDE DU COMPORTEMENT TIII AVEC LA COMPOSITION DES PAROIS

La taille de la première partie  $(\epsilon1_{T3}, \sigma1_{T3})$  peut donner des indications sur la capacité de la fibre soumise à une sollicitation en traction à absorber de l'énergie avant la réorientation des microfibrilles. Or, Alix et al., 2009 puis Bourmaud et al 2013 ont montré que le rapport des hémicelluloses (EOH) sur les incrustants pectiques (EH) était le reflet de la cohésion entre les microfibrilles de cellulose et les polymères non-cellulosiques (pectines et hémicelluloses). Lors de cette étude, la mise en relation entre l'étude du comportement TIII avec la composition des parois a permis de mettre en avant que les polysaccharides structurants (EOH), ayant des liens entre les microfibrilles de cellulose, seraient plus liés à la première partie non-linéaire de la courbe de déformation. Alors que, les polysaccharides assimilés à la matrice (EH), dans laquelle les microfibrilles de cellulose sont incorporées, influeraient plus sur la deuxième partie de la courbe de déformation dans laquelle le module tangent augmente (Lefeuvre et al., 2014).

#### REFERENCES

- Alix, S., Goimard, J., Morvan, C., Baley, C., "Influence of pectin structure on mechanical properties of flax fibres: a comparison between a linseed-winter variety (Oliver) and a fibres-spring variety of flax (Hermès).", *Pectins Pectinases Ed. HA Sch. RGF Visser AGJ Voragen*, (2009), pp. 87–96.
- Andersons, J., Sparsins, E., Joffe, R., Wallström, L., "Strength distribution of elementary flax fibres.", *Compos. Sci. Technol.*, **65**, (2005), pp. 693–702.
- Aslan, M., Chinga-Carrasco, G., Sørensen, B.F., Madsen, B., "Strength variability of single flax fibres.", *J. Mater. Sci.*, **46**, (2011), pp. 6344–6354.
- Baley, C., "Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. Compos.", *Part Appl. Sci. Manuf.*, **33**, (2002), pp. 939–948.
- Baley, C., Le Duigou, A., Bourmaud, A., Davies, P., "Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites.", *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, **43**, (2012), pp. 1226–1233.
- Bourmaud, A., Morvan, C., Baley, C., "Importance of fiber preparation to optimize the surface and mechanical properties of unitary flax fiber.", *Ind. Crops Prod.*, **32**, (2010), pp. 662–667.
- Bourmaud, A., Morvan, C., Bouali, A., Placet, V., Perré, P., Baley, C., "Relationships between micro-fibrillar angle, mechanical properties and biochemical composition of flax fibers.", *Ind. Crops Prod.*, **44**, (2013), pp. 343–351.
- Charlet, K., Baley, C., Morvan, C., Jernot, J.P., Gomina, M., Bréard, J., 2007. "Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites.", *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, **38**, (2007), pp. 1912–1921.
- Gorshkova, T., Morvan, C., "Secondary cell-wall assembly in flax phloem fibres: role of galactans.", *Planta*, **223**, (2005), pp. 149–158.
- Gorshkova, T.A., Sal'nikov, V.V., Chemikosova, S.B., Ageeva, M.V., Pavlencheva, N.V., van Dam, J.E.G., "The snap point: a transition point in *Linum usitatissimum* bast fiber development.", *Ind. Crops Prod.*, **18**, (2003), pp. 213–221.
- Lefeuvre, A., Bourmaud, A., Lebrun, L., Morvan, C., Baley, C., "A study of the yearly reproducibility of flax fiber tensile properties.", *Ind. Crops Prod.*, **50**, (2013), pp. 400–407.
- Lefeuvre, A., Bourmaud, A., Morvan, C., Baley, C., "Elementary flax fibre tensile properties: Correlation between stress-strain behaviour and fibre composition", *Ind. Crops Prod.*, (2014).

# CARACTERISATION DES PROPRIETES THERMO-MECANIKES D'AMIDONS THERMOPLASTIQUES : INFLUENCE DE LA COMPOSITION ET DE LA TENEUR EN EAU

L. Leroy, V. Miri, G. Stoclet, J.M. Lefebvre *UMET – Unité Matériaux et Transformations, Université Lille 1, bâtiment C6, 59655 Villeneuve d'Ascq. Téléphone : 03 20 43 49 67, Télécopie : 03 20 43 65 91, Adresse électronique : lise.leroy@ed.univ-lille1.fr*

**Mots clés : Amidons, propriétés thermo-mécaniques, composition, teneur en eau**

## 1. INTRODUCTION

Dans un monde où les enjeux environnementaux sont de plus en plus importants, trouver une solution de remplacement aux polymères pétrochimiques est une des solutions pour réduire notre impact environnemental. Parmi les polymères naturels existants, l'amidon est le polysaccharide le plus abondant qui a attiré l'attention des chercheurs. Cependant, les relations entre la structure et les propriétés physiques de ce biopolymère ne sont pas encore bien connues. L'objectif de cette étude est de déterminer le rôle des constituants (amylose et amylopectine) de l'amidon sur son comportement thermo-mécanique.

## 2. MATERIAUX DE L'ETUDE

### 2.1 Amidons natifs

Cette étude porte sur quatre amidons de compositions différentes (tableau (1)) : l'amidon de maïs cireux, de pomme de terre, de blé et de maïs (eurylon 6).

	Amylose content (%)	Amylopectin content (%)	Crystallinity of native starches (%)
Waxy maize starch	0	100	30
Potato starch	25	75	30
Wheat starch	30	70	20
Maize starch (eurylon 6)	60	40	15

*Tableau 1. Composition et taux de cristallinité des amidons natifs*

Les diffractogrammes des poudres d'amidons natives sont représentés sur la figure (1). Les structures cristallines des amidons natifs de pomme de terre et de maïs sont de type hexagonale (type B) comme le montre la présence de la raie de diffraction à  $2\theta=5^\circ$ , alors que les amidons de maïs cireux et de blé présentent une structure monoclinique (type A). Ces résultats indiquent que la structure cristalline n'est pas dépendante de la composition, mais de l'origine botanique des amidons.

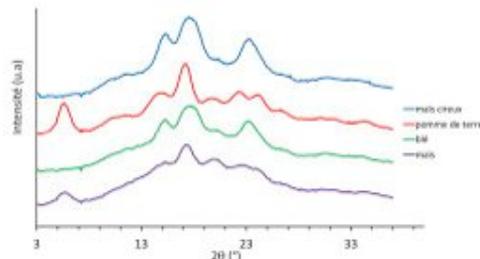


Figure 1. Structure cristalline des amidons natifs

## 2.2 Amidons thermoplastiques

Les amidons thermoplastiques ont été obtenus par extrusion, afin de les rendre amorphe. La structure de ces matériaux présentée sur la figure (2) montre que l'extrusion a permis l'amorphisation totale ou partielle des amidons natifs. Seul l'amidon de maïs contient encore une partie cristalline.

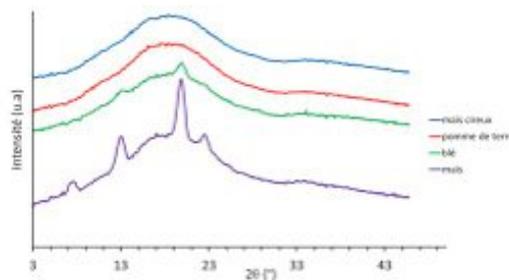


Figure 2. Structure cristalline des amidons thermoplastiques

## 3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION ET DE LA TENEUR EN EAU SUR LES PROPRIETES THERMIQUES DES AMIDONS THERMOPLASTIQUES

L'amidon est un matériau hydrophile. L'influence de l'humidité sur les propriétés thermiques des amidons thermoplastiques a été étudiée par DMA sur les différents amidons stockés au préalable à 58%RH et 89%RH (figure (3)).

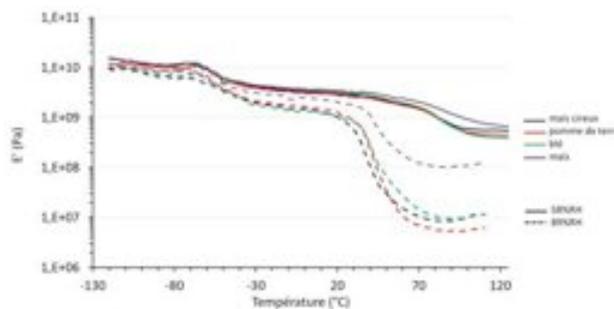


Figure 3. Courbes DMA des amidons thermoplastiques en fonction de l'humidité

Sur ces courbes, on remarque que la relaxation principale, associée à la  $T_g$  ne semble pas influencée par la composition des différents amidons. En revanche, elle dépend fortement de la teneur en eau des amidons. Pour ceux stockés à 58%RH,  $T_g$  est de l'ordre de 80°C et pour ceux stockés à 89%RH elle est de 40°C.

Une relaxation secondaire est aussi observée vers -50°C pour tous les amidons quel que soit le taux d'humidité. Une étude complémentaire par spectroscopie diélectrique semble indiquer qu'il s'agit de mouvements localisés au sein de la chaîne carbonée.

## 4. PROPRIETES MECANIQUES DES AMIDONS THERMOPLASTIQUES

### 4.1 Influence de la composition

Les propriétés mécaniques de ces matériaux ont été évaluées par traction uniaxiale dans une enceinte climatique, afin de contrôler la température et l'humidité au cours des essais. Pour déterminer l'influence de la composition sur les propriétés mécaniques, les différents amidons ont été déformés à 80°C et 70%RH, de façon à se situer au dessus de Tg, figure (4).

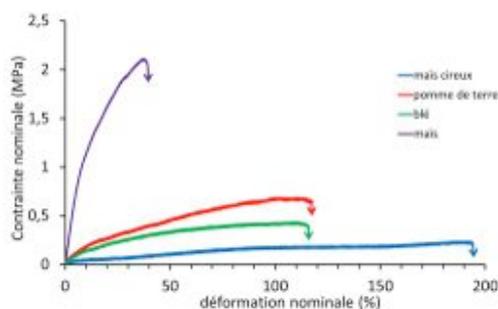


Figure 4. Courbes de traction des différents amidons,  $10^{-2} s^{-1}$

Ces courbes montrent que la composition de l'amidon influence le comportement mécanique. En particulier, l'augmentation de la quantité d'amylopectine améliore la ductilité : on observe une augmentation de la déformation ainsi qu'une diminution de la contrainte pour le maïs cireux.

### 4.2 Influence de l'humidité

Afin de comprendre l'effet de l'humidité sur les propriétés mécaniques, des essais de traction sur l'amidon de pomme de terre ont été effectués à température constante (80°C) sous différentes humidités : 55, 70 et 90%RH, figure (5).

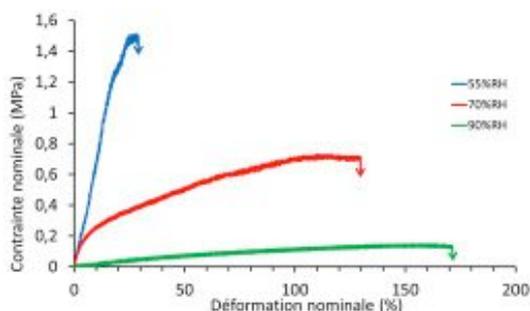


Figure 5. Courbes de traction d'amidon de pomme de terre à différentes humidités,  $10^{-2} s^{-1}$

La figure (5) montre que l'humidité influence fortement les propriétés mécaniques. La déformation diminue avec l'hygrométrie alors que le module élastique et le niveau de contrainte augmente. L'eau étant un plastifiant de l'amidon, en diminuant sa quantité dans l'amidon, on augmente la Tg de ce dernier, ce qui rend le matériau plus fragile.

## 5. CONCLUSION

Les propriétés thermiques des amidons thermoplastiques sont très sensibles à la teneur en eau mais ne sont pas influencées par la composition. En revanche, les propriétés mécaniques semblent fortement influencées par l'humidité et la composition des amidons. Alors que l'eau joue clairement un effet de plastifiant, l'augmentation de la teneur en amylopectine semble favoriser la ductilité de l'amidon.

# ÉVOLUTION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES D'UN FILM BIODÉGRADABLE ET ACTIF EN FONCTION DE L'HUMIDITÉ

A. Mahieu, C. Terrié, *Unité AGRI'TERR, Esitpa, 3 rue du Tronquet, CS 40118, 76134 Mont Saint Aignan Cedex, France. Téléphone : 02 32 82 91 76, Télécopie : 02 35 05 27 40, Adresses électroniques : amahieu@esitpa.fr, cterrie@esitpa.fr*

B. Youssef, *AMME-LECAP, EA4528, Institut des matériaux de Rouen, Université et INSA de Rouen, Avenue de l'Université, BP12, 76801 Saint Etienne du Rouvray Cedex, France. Adresse électronique : boulos.youssef@univ-rouen.fr*

**Mots clés : matériau biodégradable, amidon, absorbeur d'oxygène, propriétés mécaniques, structure cristalline.**

## 1. INTRODUCTION

Un concept innovant est développé depuis une vingtaine d'année dans l'emballage alimentaire : des matériaux actifs qui contribuent à prolonger la durée de conservation des aliments (Vermeiren *et al.*, 1999). Parmi ces nouveaux matériaux, les emballages actifs absorbeurs d'oxygène présentent un intérêt grandissant car ils permettent de limiter l'oxydation des aliments et le développement bactérien tout en limitant l'ajout de conservateurs dans les aliments. Les absorbeurs d'oxygène se présentent généralement sous forme de sachets qui sont introduits dans l'emballage. Des études ont permis l'inclusion d'absorbeurs d'oxygène directement dans les films d'emballage mais ceux-ci sont développés essentiellement pour les résines PET.

Le deuxième enjeu majeur pour l'emballage concerne les conséquences environnementales liées à l'utilisation de matériaux à très longue durée de vie pour des applications à courte durée de vie. L'industrie de l'emballage alimentaire se tourne donc de plus en plus vers l'utilisation de matériaux biosourcés et/ou biodégradables (Siracusa *et al.*, 2008). Mais très peu d'études présentent des matériaux d'emballage qui soient à la fois biodégradables et actifs. Les travaux présentés ici portent sur la réalisation de ce type de matériau : un film biodégradable à base d'amidon de blé qui possède une capacité d'absorption de l'oxygène activable au moment de l'utilisation du matériau.

Dans le but de remplacer les polymères synthétiques dans l'emballage alimentaire par des matériaux plus respectueux de l'environnement, une attention particulière est portée à l'amidon (Liu *et al.*, 2009; Averous, 2004). L'amidon thermoplastique (TPS) présente une large gamme de propriétés suivant le taux de plastifiants et le procédé de mise en forme utilisé. Néanmoins le TPS est un matériau très hydrophile. Ses propriétés mécaniques, notamment, varient de façon importante en fonction du taux d'humidité. Pour améliorer sa résistance à l'humidité tout en conservant son caractère biodégradable, une stratégie consiste à associer le TPS à un autre polymère biodégradable plus hydrophobe (Yu *et al.*, 2006), comme le polycaprolactone (PCL) (Myllymaki *et al.*, 1998; Li & Favis, 2010). Des travaux précédents (Mahieu *et al.*, 2013), ont montré que le mélange de 30% de PCL (50 000 g/mol) avec le TPS donne un matériau homogène dont l'affinité de surface avec l'eau est réduite ainsi que la variabilité des propriétés mécaniques en fonction du taux d'humidité même si l'effet du mélange sur la sorption d'eau du matériau est faible.

Dans cette étude, le TPS et un mélange TPS/PCL sont utilisés comme matrices pour l'élaboration d'un film biodégradable absorbeur d'oxygène. Les composés réactifs à l'oxygène ajoutés sont l'acide ascorbique (AA) et la poudre de fer (Fe) dont l'association a été utilisée avec succès comme absorbeur d'oxygène dans un film d'éthylène vinyl acétate par Yeh *et al.* (2008). L'objectif de cette étude est d'évaluer la capacité d'absorption d'oxygène de ces films ainsi que l'influence des agents actifs sur les propriétés mécaniques du matériau et sur leur évolution en fonction de l'humidité.

## 2. MÉTHODES EXPÉRIMENTALES

L'amidon de blé est plastifié avec 20% de glycérol par extrusion monovis (TPS). La formulation TPS-AA-Fe contient 15% massique d'acide ascorbique et 1.5% de poudre de fer. La formulation TPS-PCL-AA-Fe contient en plus 20% massique de PCL (CAPA, Perstorp) à 50000 g/mol.

Les isothermes de sorption de l'eau de ces matériaux sont déterminées par mesures gravimétriques statiques. Leur capacité d'absorption de l'oxygène est mesurée en suivant dans le temps la teneur en oxygène dans une enceinte hermétique à humidité contrôlée, contenant un échantillon des matériaux. Les propriétés mécaniques de ces films sont mesurées par des essais de traction après conditionnement des éprouvettes à différents taux d'humidité. Les structures cristallines du TPS et du TPS-PCL sont mesurées par diffraction des rayons X.

## 3. RÉSULTATS ET DISCUSSION

### 3.1 Sorption d'Eau

Les films à base de TPS présentent un comportement en sorption de l'eau caractéristique des matériaux hydrophiles. Le TPS absorbe jusqu'à 50% de sa masse en eau pour une activité de l'eau de 0.93. L'ajout des agents actifs ne modifie pas de manière significative le comportement en sorption de l'eau du matériau. L'isotherme de sorption de l'eau du film TPS-PCL est très proche de celle du TPS jusqu'à  $a_w = 0.5$ . Aux  $a_w$  plus élevées l'absorption d'eau diminue pour le TPS-PCL par rapport au TPS. Cette diminution est proportionnelle au taux de PCL présent dans le matériau. En effet le PCL seul n'absorbe pas du tout l'eau. La diminution de la quantité d'eau absorbée par le TPS-PCL est donc due à la diminution de la proportion de phase TPS dans le mélange.

### 3.2 Absorption d'Oxygène

La Figure 1 présente la capacité d'absorption d'oxygène des matériaux, mesurée à 85% d'humidité relative pour le film TPS-AA-Fe et à 93%HR pour le TPS-PCL-AA-Fe. A ces taux d'humidité les deux matériaux absorbent la même quantité d'eau à l'équilibre.

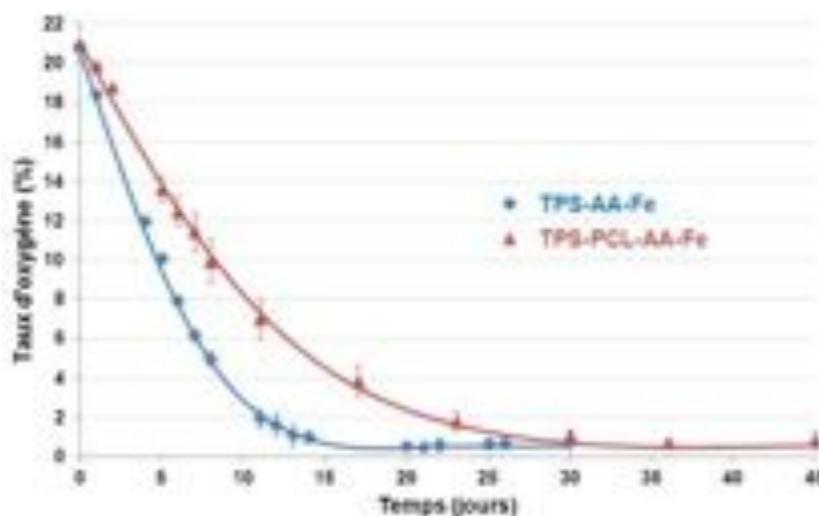


Figure 1. Evolution du taux d' $O_2$  en présence des films TPS-AA-Fe et TPS-PCL-AA-Fe

Dans l'enceinte contenant l'échantillon de TPS-AA-Fe, le taux d'oxygène descend à moins de 1% en 15 jours. La vitesse d'absorption de l'oxygène de ce matériau est comparable à celle obtenue avec des sachets absorbeurs commerciaux à base d'acide ascorbique.

Avec le film TPS-PCL-AA-Fe, le même résultat est obtenu en 30 jours. L'ajout de 20% de PCL dans le matériau fait donc doubler le temps nécessaire à l'absorption de l'oxygène présent. Le PCL est perméable à l' $O_2$  mais il doit limiter la disponibilité de l'acide ascorbique pour l' $O_2$  au sein du film.

### 3.3 Propriétés Mécaniques

Les propriétés mécaniques des deux matériaux en fonction du taux d'humidité relative de conditionnement des éprouvettes sont présentées sur la Figure 2.

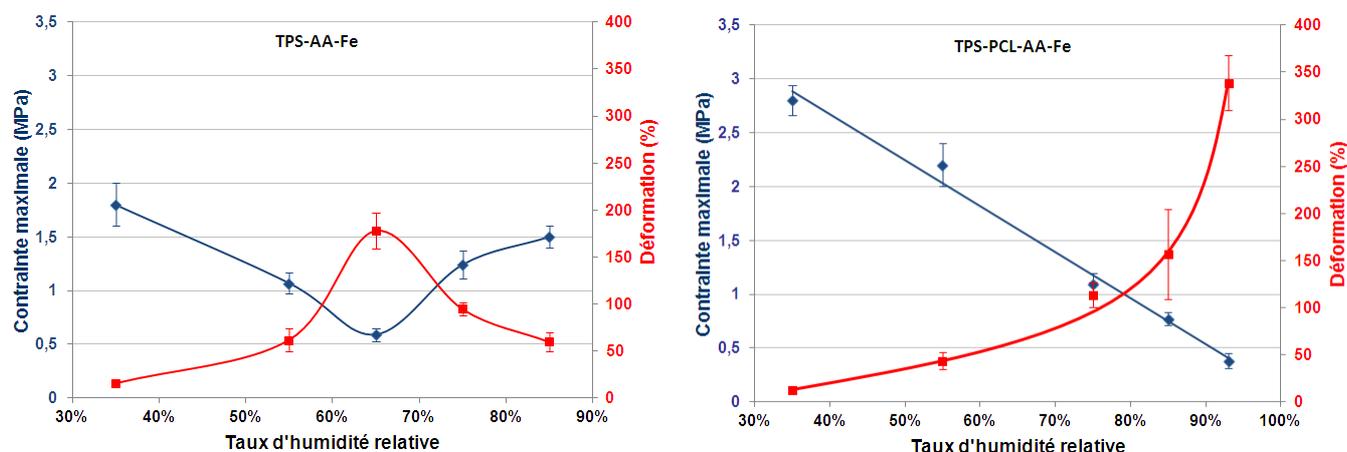


Figure 2. Propriétés mécaniques des films TPS-AA-Fe et TPS-PCL-AA-Fe en fonction de l'humidité

L'évolution des propriétés mécaniques des films en fonction du taux d'humidité relative est très différente entre les films contenant du PCL ou non. Jusqu'à 65%HR, la déformation des films augmente avec l'humidité et la contrainte maximale diminue. A 55% HR la résistance mécanique du film TPS-AA-Fe est faible (~1MPa). L'ajout de 20% de PCL à la formulation permet d'augmenter légèrement la résistance mécanique du film, qui est d'environ 2 MPa pour le film TPS-PCL-AA-Fe. Au-delà de 65%HR, pour le film contenant du PCL, la contrainte maximale continue de diminuer tandis que la déformation augmente de façon importante. Au contraire pour le film TPS-AA-Fe, aux taux d'humidité élevés la contrainte maximale augmente et la déformation diminue. A 85%HR, le film TPS-AA-Fe est alors plus résistant (1.5MPa) que le film TPS-PCL-AA-Fe (0.8MPa).

### 3.4 Structure Cristalline

L'évolution en fonction de l'humidité de la structure cristalline de l'amidon plastifié dans les matériaux étudiés semble pouvoir expliquer les différences observées sur l'évolution des propriétés mécaniques. En effet une rétrogradation de la structure cristalline caractéristique de l'amidon natif est observée dans le TPS conditionné à 75% HR. C'est cette nouvelle phase cristalline qui rend le matériau plus rigide à partir de 75%HR. La présence de PCL dans le film TPS-PCL semble empêcher la rétrogradation de l'amidon. Cela peut expliquer qu'il n'y ait pas d'inversion dans l'évolution des propriétés mécaniques du film TPS-PCL-AA-Fe.

## 4. CONCLUSION

L'ajout d'acide ascorbique et de fer dans la matrice TPS donne au matériau une capacité d'absorption de l'oxygène activable par l'humidité mais il diminue la résistance mécanique du film. L'ajout de PCL au matériau actif permet d'augmenter légèrement la contrainte supportée par le film mais ralentit fortement la cinétique d'absorption d'oxygène du matériau. De plus à partir de 75%HR, taux d'humidité relative nécessaire à l'activation de la réaction d'absorption d'oxygène par les films, la résistance mécanique du film TPS-AA-Fe augmente légèrement et devient plus élevée que celle du film contenant du PCL. Le film TPS-AA-Fe semble donc pouvoir être utilisé dans une application comme emballage alimentaire actif sans nécessiter l'ajout de PCL.

## REFERENCES

- Averous L., "Biodegradable Multiphase Systems Based on Plasticized Starch: A Review", *Journal of Macromolecular Science Part C-Polymer Reviews*, **C44**, (2004), pp. 231-274.
- Li G., Favis B. D., "Morphology Development and Interfacial Interactions in Polycaprolactone/ Thermoplastic-Starch Blends", *Macromolecular Chemistry and Physics*, **211**, (2010), pp. 321-333.
- Liu H., Xie F., Yu L., Chen L., Li L., "Thermal processing of starch-based polymers", *Progress in Polymer Science* **34**, (2009), pp. 1348-1368.
- Mahieu A., Terrié C., Agoulon A., Leblanc N., Youssef B., "Thermoplastic starch and poly( $\epsilon$ -caprolactone) blends: morphology and mechanical properties as a function of relative humidity", *Journal of Polymer Research*, **20**, (2013), pp. 1-13.
- Myllymäki O., Myllärinen P., Forssell P., Suortti T., Lähteenkorva K., Ahvenainen R., Poutanen K., "Mechanical and Permeability Properties of Biodegradable Extruded Starch/ polycaprolactone Films", *Packaging Technology and Science*, **1**, (1998), pp. 265-274.
- Siracusa V., Rocculi P., Romani S., Dalla Rosa M., "Biodegradable polymers for food packaging: a review", *Food Science & Technology*, **19**, (2008), pp. 634-643.
- Vermeiren L., Devlieghere F., van Beest M., de Kruijf N., Debevere J., "Developments in the active packaging of foods", *Trends in Food Science & Technology* **10**, (1999), pp.77-86.
- Yeh J.T., Cui L., Chang C.J., Jiang Y., Chen K.N., "Investigation of the Oxygen Depletion Properties of Novel Oxygen Scavenging Plastics", *Journal of Applied Polymer Science*, **110**, (2008), pp. 1420-1434.
- Yu L., Dean K., Li L., "Polymer blends and composites from renewable resources", *Progress in Polymer Science*, **31**, (2006), pp. 576-602

# DEVELOPPEMENT D'UN MICROROBOT POUR LA CARACTERISATION EN FLEXION OU COMPRESSION DIAMETRALE DE FIBRES LIGNO-CELLULOSIQUES

**B. Manship**, P. J. J. Dumont, R. Passas, M. Aichi *Laboratoire LGP2, CNRS / Grenoble Alpes, 461 rue de la Papeterie, CS 10065 38402 Saint-Martin d'Hères. Téléphone : 04 76 82 69 58, Adresses électroniques : [brigitte.manship@lgp2.grenoble-inp.fr](mailto:brigitte.manship@lgp2.grenoble-inp.fr), [pierre.dumont@pagora.grenoble-inp.fr](mailto:pierre.dumont@pagora.grenoble-inp.fr), [raphael.passas@pagora.grenoble-inp.fr](mailto:raphael.passas@pagora.grenoble-inp.fr)*

M. Mikczinski *OFFIS - Institute for Information Technology, Division Health, Group Automated Nanohandling, Escherweg 2, D-26121, Oldenburg, Allemagne.*

F. Roussel, F. Charlot, L. Maniguet *CMTC Grenoble INP, 260 rue de la Piscine, BP 75 38402 Saint-Martin-d'Hères.*

**Mots clés : Fibres ligno-cellulosiques, Microrobotique, Compression diamétrale, Flexion**

## 1. INTRODUCTION

Les papiers sont constitués majoritairement de fibres ligno-cellulosiques extraites principalement du bois par des procédés chimiques ou mécaniques ou bien issues d'opérations de recyclage. Lors de la préparation de la pâte à papier, les fibres subissent généralement des opérations dites de raffinage visant à engendrer une transformation de la structure interne de leurs parois (fibrillation interne) et de leur surface (fibrillation externe) ainsi qu'à susciter un accroissement de la déformabilité des fibres. Les propriétés mécaniques du papier dépendent principalement de celles des fibres individuelles les constituant (Kellogg et Wangaard, 1964) ainsi que des liaisons qu'elles forment entre elles. Comprendre et modéliser le comportement mécanique d'une fibre pourrait ainsi bénéficier à la compréhension et à l'optimisation du comportement mécanique de ces matériaux au cours de leur fabrication ainsi qu'à l'amélioration de leurs propriétés d'usage.

La majorité des travaux précédents effectués sur les propriétés mécaniques de fibres individuelles portent sur l'analyse de leur comportement en traction (Eder *et al.*, 2013). Par contre, les fibres subissent également des forces de compression diamétrale et de flexion longitudinale lors des étapes de fabrication du papier (pressage, séchage contraint). Cependant, peu de travaux portant sur le comportement des fibres sous ces deux types de sollicitations mécaniques ont été réalisés à ce jour (Tchepel *et al.*, 2006). Avec l'émergence d'outils de micromanipulation et de microrobotique, intégrées à des équipements permettant une très haute résolution d'image, tels que les microscopes électroniques à balayage (MEB), il devient concevable d'effectuer des tests mécaniques sur des fibres ligno-cellulosiques avec une précision micro voire nanométrique. Quelques travaux antérieurs ont effectivement démontré l'applicabilité et la pertinence de ces équipements pour la manipulation de ce type d'objets (Saketi *et al.*, 2012 ; Mikczinski *et al.*, 2013).

Notre projet tente globalement, en s'appuyant sur ces technologies, d'apporter des données mécaniques, statistiquement fiables, pour aboutir à la modélisation du comportement mécanique de fibres ligno-cellulosiques papetières. Dans cette contribution, nous présentons un nouveau dispositif de microrobotique permettant la réalisation d'essais de compression et de flexion sur des fibres individuelles. La validation de ce dispositif nécessite de nombreux essais préliminaires pour définir ses conditions optimales d'utilisation. Finalement quelques résultats d'essais de compression diamétrale et de flexion sur des fibres papetières de résineux sont présentés.

## 2. CONCEPTION ET MISE AU POINT DU MICROROBOT

### 2.1 Principe du dispositif

Le microrobot (Fig. 1) a été conçu et développé pour permettre son utilisation au sein de microscopes électroniques à balayage environnementaux (Quanta 200 et Quanta 250, FEI) en collaboration avec OFFIS, notamment pour l'intégration des unités de commandes, faisant l'interface entre le microrobot et le logiciel d'automatisation (OFFIS Toolbox, Diederichs *et al.*,

2013). Afin d'effectuer des tests de compression et de flexion, le système de microrobotique a été doté d'un actionneur MCS-3D (SmarArct GmbH) (Figs. 1A-a et 1B-a) permettant des déplacements en X, Y, Z (Fig. 1A) (amplitude max. 11 mm, précision 2 nm, vitesse max. 13 mm/s), ainsi qu'un actionneur PI E-664/P-611K069 (Physik Instrumente) permettant des déplacements fins en X, Y, Z (Figs. 1A-c & 1B-c) (amplitude max. 100  $\mu\text{m}$ , précision 0.2 nm, vitesse max. 10  $\mu\text{m/s}$ ). Un micro-capteur de force FT-S1000 /FF-SC01 (Femtotools) d'une capacité maximale de 1mN (résolution de 0.05  $\mu\text{N}$  à 10 Hz), placé sur le porte capteur du SmarAct (Figs. 1A-b et 1B-b), est déplacé vers un porte-échantillon en aluminium intégré au PI (Figs. 1A-d et 1B-d) pour mettre en contact, dans le plan axial, la surface active du capteur de force de 50  $\mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$  avec la fibre à tester (Fig. 1C-e).

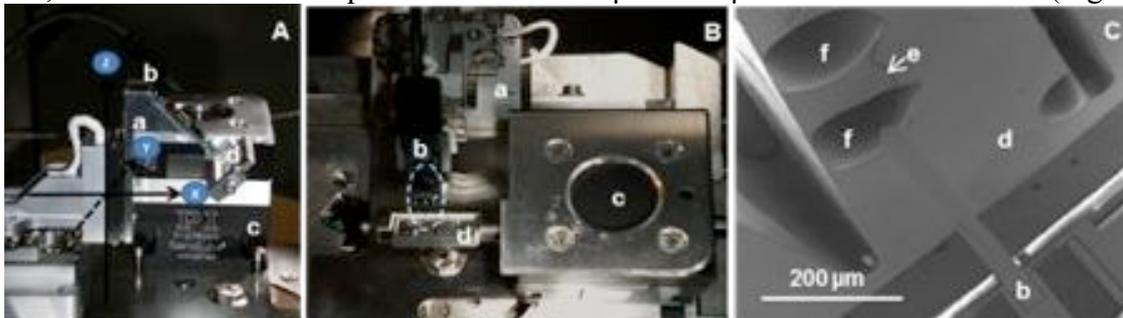


Figure 1. A. Photos du microrobot vu de côté et (B) vu de dessus, avec le SmarAct (a), et un schéma de ses déplacements (X, Y, Z), ainsi que le capteur de force (b), le PI (c) et le porte-échantillon (d). L'ovale blanc hachuré est agrandi sur la figure (C). C. Photo MEB du porte échantillon (d) avec le capteur de force (b) en approche d'une fibre (e) entre deux points de colle (f).

### 3. CARACTÉRISATION DU FONCTIONNEMENT DU MICROROBOT

#### 3.1 Linéarité des déplacements

Les déplacements des axes du SmartAct ont été caractérisés par l'étude de l'adéquation entre le déplacement demandé et la position de l'actionneur donné par le contrôleur pour une amplitude de déplacement de 2  $\mu\text{m}$ , avec des vitesses d'approche et de recul de 0.025  $\mu\text{m/s}$  ou de 0.05  $\mu\text{m/s}$ . Les courbes obtenues sont bien linéaires ( $R^2$  entre 0.9970 et 0.9999, Figs. 2A et 2B), mais les déplacements effectués ne suivent pas exactement les déplacements demandés ce qui oblige à une légère correction des mesures des déplacements.

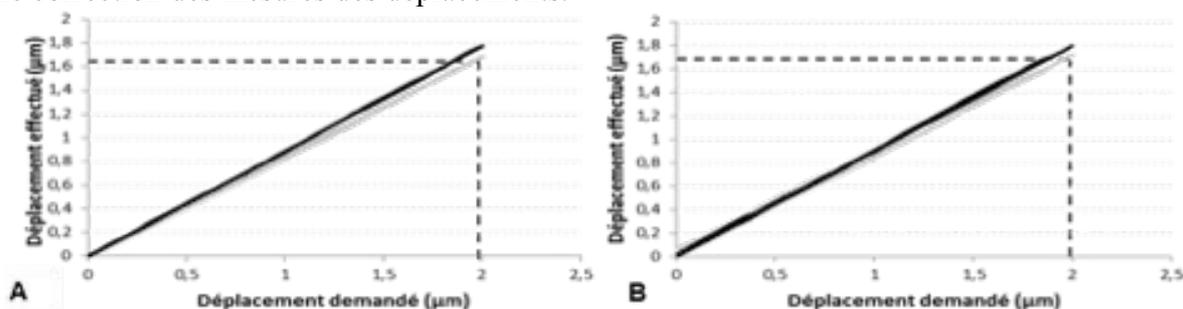


Figure 2. Graphique représentant le déplacement réel du SmarAct par rapport au déplacement demandé à une vitesse de 0.025  $\mu\text{m/s}$  (A) et de 0.05  $\mu\text{m/s}$  (B). Déplacements selon l'axe X (courbe noire) et l'axe Z (courbe grise).

#### 3.2 Stabilité du capteur de force

L'étude de la stabilité du capteur de force a été réalisée à une fréquence d'échantillonnage de 1 Hz pour des essais de mise en contact de la pointe du capteur sur un support rigide plan en aluminium. Un cycle de charge, stabilisation sur 250 s et décharge (vitesses de charge et de décharge de 0.025  $\mu\text{m/s}$  ou de 0.05  $\mu\text{m/s}$ ) a été utilisée. Deux forces maximales de mise en contact ont été testées : 300  $\mu\text{N}$  et 600  $\mu\text{N}$  (Fig. 3A). Un essai à charge nulle a été par ailleurs effectué. Les résultats obtenus pour les deux vitesses étant très similaires, seules les courbes à 0.05  $\mu\text{m/s}$  sont représentées. À charge nulle, les variations de force observées sont inférieures à 1  $\mu\text{N}$  (Fig. 3B, trait noir). Lorsqu'une force de 300  $\mu\text{N}$  est appliquée lors du contact, celle-ci augmente ensuite d'environ 30  $\mu\text{N}$

sur 20 s (Fig. 3B, trait gris clair) puis diminue. Pour une force au contact de 600  $\mu\text{N}$ , seule une augmentation de 80  $\mu\text{N}$  environ est constatée (Fig. 3B, trait gris foncé). Les évolutions constatées pour la force suggèrent un manque de stabilité du positionnement de l'actionneur sous charge (voir la mesure du déplacement lors de la phase de stabilisation sur la Fig. 3C). Par exemple, un mouvement résiduel de 0.1  $\mu\text{m}$  en 250 s pour une force maximale demandée de 600  $\mu\text{N}$  (Fig. 3C, trait gris foncé). Ces défauts de positionnement doivent être pris en compte lors d'essais de maintien sous charge.

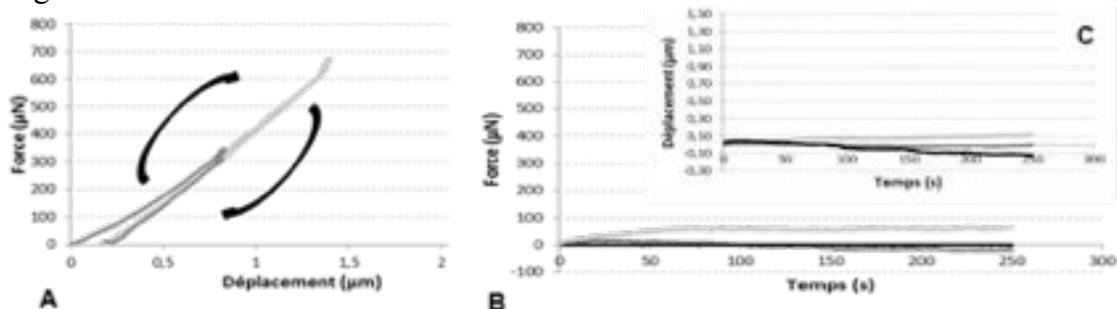


Figure 3. A. Courbes de charge à une force maximale de 600  $\mu\text{N}$  (gris clair) ou 300  $\mu\text{N}$  (gris foncé), stabilisation (sur 250 s) et décharge à une vitesse de 0.05  $\mu\text{m/s}$ . B. Stabilité du capteur de force sur 250 s, sans charge (trait noir) et avec les mêmes charges qu'en A. C. Déplacement du capteur de force sur 250 s, sans charge (trait noir) et avec les mêmes charges qu'en A.

### 3.3 Raideur du dispositif

Afin de déterminer la raideur du dispositif, des tests de compression ont été réalisés sur des matériaux ayant des modules de Young connus, comme le polydiméthylsiloxane (3,5 MPa, triangle noir), le polystyrène (2,7 GPa, rond noir), le silicium (72 GPa, losange gris), l'aluminium (69 GPa, triangle gris) et le saphir (420 GPa, losange noir) : voir Fig. 4B. Le graphique 4A représente 10 cycles de compression sur l'aluminium, ainsi que la pente d'une courbe à la décharge et son équation. Les pentes des 10 cycles sont très similaires à celle affichée (Fig. 4A, en noir) ce qui permet d'estimer la raideur du dispositif nécessaire pour corriger les courbes d'essais obtenues sur les fibres cellulodiques. La figure 4B permet d'estimer en fonction des matériaux des porte-échantillons choisis la raideur du microrobot. Les porte-échantillons en aluminium, silicium et saphir doivent être préconisés.

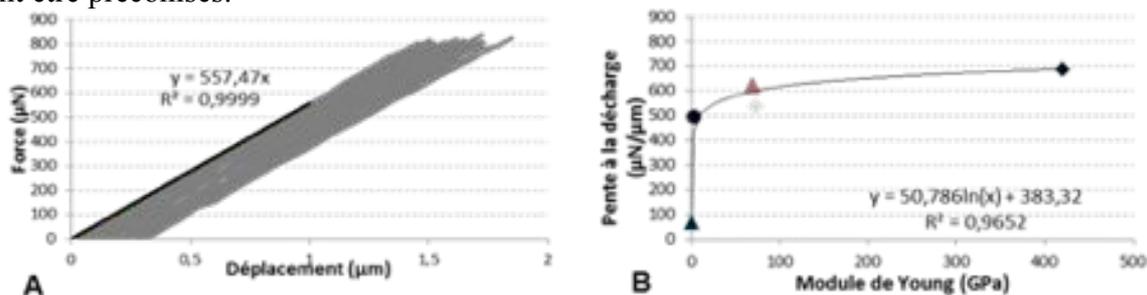


Figure 4. A. Courbes représentant 10 cycles de compression (trait gris foncé) sur l'aluminium, avec la pente d'une courbe à la décharge. B. Moyenne de pentes ( $n = 6$ ) à la décharge de matériaux connus en fonction de leur module de Young.

## 4. ESSAIS DE COMPRESSION ET DE FLEXION SUR FIBRES

### 4.1 Origine des fibres et collage sur supports d'essais

Les fibres de résineux (*Pinus sylvestris*) (Fig. 1C-e) sont issues de pâtes blanches non raffinées. Elles mesurent 30 à 50  $\mu\text{m}$  de largeur pour 2 à 3 mm de longueur. Après une remise en suspension de la pâte dans l'eau, les fibres individuelles sont prélevées avec des pinces, puis placées sur le porte-échantillon. Leur fixation est assurée par collage (époxy, Bostik) de leurs extrémités (Fig. 1C-f). Les tests mécaniques doivent être réalisés à une distance minimale de 400  $\mu\text{m}$  des points de colle pour éviter de tester des zones où celle-ci aurait diffusé.

## 4.2 Comportement des fibres sous sollicitations de compression diamétrale et de flexion

Lors des tests mécaniques, l'imagerie MEB est effectuée à faible vide (100 Pa) pour éviter la métallisation des fibres qui pourrait affecter leurs propriétés mécaniques. Les essais préliminaires de compression et flexion de fibres individuelles ont été réalisés en appliquant des cycles de charge-décharge et en atteignant des forces maximales de 800  $\mu\text{N}$  et 300  $\mu\text{N}$  en compression (Fig. 5A) et en flexion (Fig. 5B), respectivement. Les courbes de force obtenues reflètent vraisemblablement les mécanismes de déformation complexes des fibres (affaissement du lumen, torsion, allongement) ainsi que les couplages entre ces mécanismes liés à la structure anisotrope et hétérogène (zones de micro-compression) des fibres.

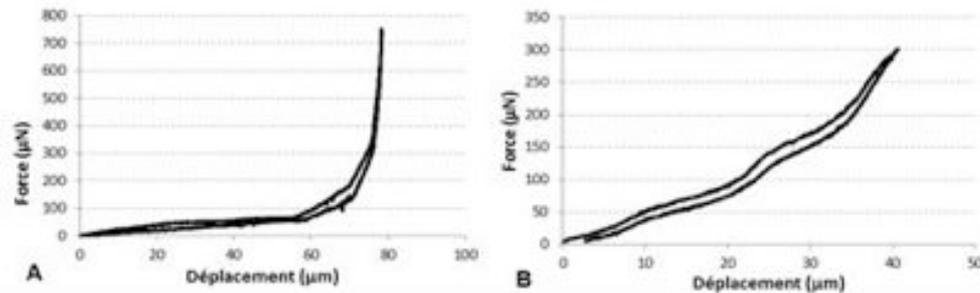


Figure 5. Test de compression à 0.025 $\mu\text{m/s}$  (A) et de flexion à 0.05 $\mu\text{m/s}$  (B) sur une fibre lignocellulosique jusqu'à une force maximale de 800  $\mu\text{N}$  et 300  $\mu\text{N}$ , respectivement.

## 5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Cette étude a permis de mettre en place un système de caractérisation mécanique des fibres lignocellulosiques individuelles pour mesurer leurs propriétés de compression diamétrale et de flexion. Après avoir qualifié la linéarité des déplacements en X et en Z, la stabilisation du capteur de force et la rigidité du système, des essais préliminaires de compression et flexion ont été réalisés sur des fibres blanchies de résineux. Afin de déterminer avec précision leurs caractéristiques mécaniques et de pouvoir modéliser ce comportement, il sera nécessaire de procéder à des essais cycliques, et d'établir des corrections pour prendre en compte les différents artefacts de mesure, qui peuvent potentiellement être réduits en utilisant l'actionneur PI. Dans un futur proche, une platine Peltier sera intégrée au dispositif pour nous permettre d'effectuer des tests sur des fibres humides.

## 6. REFERENCES

- Diederichs, C., Bartenwerfer, M., Mikczinski, M., Zimmermann, S., Tiemerding, T., Geldmann, C., M., Nguyen, H., Dahmen, C. & Fatikow, S., "A rapid automation framework for applications on the micro- and nanoscale", *Proceedings of Australasian Conference on Robotics and Automation* (2013).
- Eder, M., Arnould, O., Dunlop, J. W. C., Hornatowska, J. & Salmén, L., "Experimental micromechanical characterisation of wood cell walls", *Wood Science and Technology*, **47**, (2012), pp. 163–182.
- Kellogg, R. M. & Wangaard, F. F., "Influence of fiber strength on sheet properties of hardwood pulps", *Tappi*, **47**, (1964), pp. 361–367.
- Mikczinski, M., Nguyen, H. X. & Fatikow, S., "Assessing transverse fibre properties: fibre compression and artificial hornification by periodic compression", *15<sup>th</sup> Fundamental Research Symposium*, (2013), 803–820.
- Saketi, P., Von Essen, M., Mikczinski, M., Heinemann, S., Fatikow, S. & Kallio, P., "A flexible microrobotic platform for handling microscale specimens of fibrous materials for microscopic studies: microrobotic platform for handling microscale specimens", *Journal of Microscopy*, **248**, (2012), pp. 163–171.
- Tchepel, M., Provan, J., Nishida, A. & Biggs, C., "A procedure for measuring the flexibility of single wood-pulp fibres", *Mechanics of Composite Materials*, **42**, (2006), pp. 83–92.

# ANALYSE MULTI-ECHELLE DE L'ADHESION ENTRE DES FIBRES DE LIN ET DES MATRICES THERMODURCISSABLES BIOBASEES

L. Marrot, P. Bono, *Fibres Recherche Développement*<sup>®</sup>, Technopole de l'Aube en Champagne, Hôtel de Bureaux 2, BP 601, 10901 Troyes Cedex 9. Téléphone : 02 97 87 45 07, Adresses électroniques: [laetitia.marrot@univ-ubs.fr](mailto:laetitia.marrot@univ-ubs.fr), [pierre.bono@f-r-d.fr](mailto:pierre.bono@f-r-d.fr)

A. Bourmaud, C. Baley, *Laboratoire d'Ingénierie et Matériaux de Bretagne (UBS), Université Européenne de Bretagne, Centre de Recherche Christiaan Huygens, Rue Saint Maudé, 56321, Lorient. Téléphone 02 97 87 45 18, Adresses électroniques: [alain.bourmaud@univ-ubs.fr](mailto:alain.bourmaud@univ-ubs.fr), [christophe.baley@univ-ubs.fr](mailto:christophe.baley@univ-ubs.fr)*

**Mots clés : adhesion, fibre de lin, résine thermodurcissable, déchaussement, cisaillement dans le plan**

## 1. INTRODUCTION

L'impact environnemental des matériaux composites à matrices thermodurcissables peut être amélioré par deux actions. D'une part, en remplaçant le renfort fibres de verre traditionnellement utilisé par des fibres végétales. Parmi les fibres végétales, les fibres de lin en particulier se montrent compétitives par leurs bonnes propriétés mécaniques (Baley, 2002)(Bourmaud et al., 2013), leur faible densité et leur large disponibilité en France (ADEME, 2011). D'autre part, l'impact environnemental est réduit en substituant les composés d'origine pétrochimique de la matrice par des équivalents bio-sourcés renouvelables. Parmi les résines thermodurcissables, les résines époxy et polyester sont les plus communément utilisées dans la fabrication des composites hautes performances. Ainsi des résines thermodurcissables partiellement biobasées commencent à être proposées dans le commerce.

La qualité de la liaison interfaciale, entre les fibres et la matrice, influence fortement les propriétés mécaniques du composite, l'interface assurant le transfert de charges entre les fibres. Pour une matrice thermoplastique, la liaison fibre matrice est assurée principalement par des interactions physiques alors que pour une matrice thermodurcissable, l'adhésion résulte principalement des liaisons chimiques entre les composants (Thomason and Yang, 2013). Le test de déchaussement de microgouttes (Miller et al., 1987) est couramment utilisé pour déterminer la résistance de la liaison interfaciale. Des études (Park and Kim, 2001) (Keusch et al., 1998) ont montré que la qualité de la liaison fibre matrice à l'échelle microscopique avait une influence sur les propriétés macroscopiques des composites correspondants. Plusieurs tests macroscopiques sont sensibles aux propriétés de l'interface (Herrera-Franco and Drzal, 1992), en particulier le test de cisaillement dans le plan sur composites  $\pm 45^\circ$ .

L'objectif de cet article est d'établir si les résines époxy et polyester en partie biobasées, disponibles sur le marché actuel, peuvent rivaliser avec leurs équivalents pétrochimiques dans les composites renforcés par des fibres de lin. Une analyse multi-échelle de l'adhésion entre ces matrices et les fibres de lin est considérée. A l'échelle microscopique, la contrainte de cisaillement interfaciale (IFSS) est déterminée via le test de déchaussement de microgouttes. Comme la qualité de l'adhésion influence la résistance en cisaillement dans le plan, des tests de traction sur composites laminés à  $\pm 45$  sont menés à l'échelle macroscopique. L'existence d'une corrélation entre les deux échelles sera ensuite investiguée.

## 2. MATERIAUX

### 2.1 Fibres de lin

Les fibres de lin, de la variété Méлина, ont été cultivées en 2009 et ont été fournies par l'entreprise « La Calira » (Picardie, France). Les fibres ont été rouies au sol pour faciliter leur extraction et ont ensuite été teillées par le producteur. Aucun traitement supplémentaire n'a été appliqué aux fibres. Elles ont également été transformées pour servir de renfort de composites orientés à  $\pm 45^\circ$  pour les tests de cisaillement dans le plan. Sous la forme de nappes unidirectionnelles de mèches sans torsion, elles ont été cousues par un fil de coton. Le poids moyen des préformes est d'environ 250 g/m<sup>2</sup>.

### 2.2 Matrices époxy et polyester

Six matrices commerciales époxy et polyester ont été sélectionnées. Seules des matrices possédant un contenu en carbone renouvelable supérieur à 50% ont été retenues en tant que matrice partiellement biobasée. Des références pétrochimiques époxy et polyester ont aussi été testées à titre de comparaison. Le tableau (1) recense les matrices étudiées et leurs caractéristiques.

Type de matrice	Epoxy				Polyester	
	PetroEP	BioEPA	BioEPB	BioEPC	PetroUP	BioUP
Nom						
%Bio en masse	-	-	62	-	23	53
%Bio sur mesure du <sup>14</sup> C	-	55±2	51	50-55	-	-
Contenu bio	-	Epichlorhydrine biobasée	Huile de pin	BPA biobasé, huile de pin	-	-
Conditions de réticulation	2h à 120°C	24h à T <sub>amb</sub> +24h à 40°C	1h à 82°C	1h à T <sub>amb</sub> +2h à 80°C +5h à 140°C	24h à T <sub>amb</sub> +2h à 80°C	24h à T <sub>amb</sub> +2h at 80°C
% Réticulation	96	98	95	94	96	99

Tableau 1. Caractéristiques des matrices époxy et polyester étudiées

La réticulation complète (à plus de 94%) des matrices pour les cycles de réticulation choisis a été vérifiée par calorimétrie différentielle (Tableau (1)).

## 3. ANALYSE MICROSCOPIQUE: DECHAUSSEMENT DE MICROGOUTTES

### 3.1 Obtention de la contrainte de cisaillement interfaciale (IFSS)

Les fibres végétales sont principalement constituées de celluloses et d'hémicelluloses. Ces composants possèdent des groupements hydroxyles à leur surface, qui peuvent former des liaisons covalentes et hydrogène avec les résines époxy et polyester. Le test de déchaussement de microgouttes a été choisi pour déterminer l'adhérence de différents systèmes lin/époxy et lin/polyester.

L'équation (1) décrit le calcul de l'IFSS par la méthode de Miller *et al* (Miller et al., 1987). L'hypothèse simplificatrice d'une distribution uniforme des contraintes le long de l'interface fibre/matrice est avancée.

$$IFSS = F_{\max}/2\pi rL \quad (1)$$

Où  $F_{\max}$  est la force nécessaire au déchaussement,  $r$  est le rayon de la fibre aux extrémités de la goutte,  $L$  est la longueur de la goutte et la section de la fibre est considérée comme circulaire. L'IFSS est déterminée par régression linéaire de la courbe de force de déchaussement en fonction de la surface enchâssée.

Le système lin/BioEPC présente l'IFSS la plus élevée (28,5 MPa). Ensuite se positionnent les systèmes lin/PetroEP et lin/BioEPA avec des valeurs proches (respectivement 20,4 et 17 MPa). Finalement, le système lin/BioEPB obtient la plus faible valeur d'IFSS (11,2 MPa). L'adhérence du système lin/PetroUP (17,5 ± 7,3 MPa) correspond aux données de la littérature (14,2 ± 0,4 MPa (Le Duigou et al., 2010)). Malheureusement, nous n'avons pas réussi à obtenir de gouttes suffisamment

rigides à cette échelle avec la résine polyester biobasée. De plus, l'écart type des résultats obtenus pour notre système lin/polyester biobasée est important. La réticulation des résines polyester requiert l'ajout d'un accélérateur et d'un catalyseur en très faibles proportions. Suite au mélange tri-constituants, la variation locale de stoechiométrie au sein de la goutte est probablement responsable de la réticulation incomplète et de la dispersion des résultats.

### 3.2 Relation entre l'IFSS et les propriétés intrinsèques des matrices

Thomason et Yang (2013) ont étudié l'influence de la température environnante lors de l'essai de déchaussement sur l'IFSS de systèmes verre/époxy. Une température de réticulation identique a été utilisée pour chaque goutte mais les essais de déchaussement se sont déroulés à des températures entre 20 et 150°C. Ces auteurs ont mis en évidence que les contraintes résiduelles de compression radiale et le frottement jouent un rôle significatif dans la capacité de transfert de charge. Les contraintes radiales dépendent du retrait de la matrice, donc du module d'Young, et des différences de dilatation thermique entre les fibres et la matrice. La figure (1) montre la corrélation entre l'IFSS et le module d'Young de la matrice.

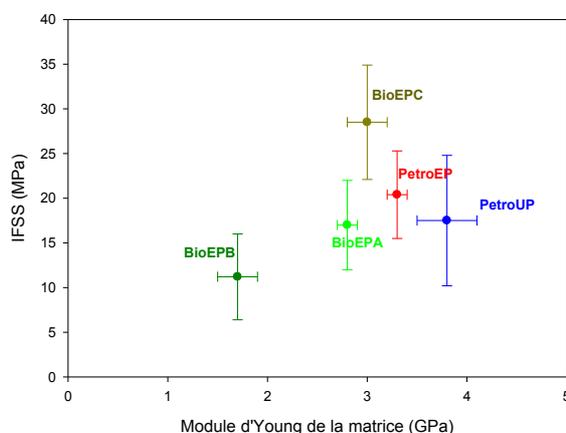


Figure 1. Adhérence microscopique (IFSS) en fonction du module d'Young de la matrice

Pour les systèmes avec matrice époxy, on distingue une tendance nette: plus le module d'Young de la matrice est élevé, meilleure est l'adhérence avec la fibre. L'adhérence de notre système lin/polyester est plus basse que celle attendue en ne tenant compte que du module de la matrice. Cependant, des mécanismes différents interviennent pour les adhérences entre le lin et l'époxy d'une part, et entre le lin et le polyester d'autre part.

## 4. ANALYSE MACROSCOPIQUE: CISAILLEMENT DANS LE PLAN

Les composites laminés à  $\pm 45^\circ$  ont été thermocompressés avec les mêmes cycles de réticulation que ceux des éprouvettes pour le test de déchaussement de microgouttes (tableau (1)). Les fractions volumiques de fibres ont été mesurées pour chaque composite et sont comparables (24-27%). Les contraintes de cisaillement de nos composites lin/époxy se situent entre 35 et 48 MPa et leurs modules de cisaillement entre 1474 et 2507 MPa. Les contraintes de cisaillement maximales sont attribuées aux composites lin/PetroEP et lin/BioEPC, puis lin/BioEPC avec des valeurs très dispersées et enfin lin/bioEPB. Celles de nos composites lin/polyester sont entre 27 et 39 MPa.

La figure (2) relie la contrainte de cisaillement plan des composites mesurée pour les composites  $\pm 45^\circ$  en fonction de l'adhérence microscopique déterminée précédemment par le test de déchaussement. Que l'on considère les composites avec matrice époxy ou polyester, les meilleures propriétés en cisaillement macroscopiques correspondent aux systèmes dont l'adhérence microscopique est maximale. Il y a une corrélation entre l'adhérence observée à l'échelle microscopique et les propriétés interfaciales macroscopiques. Ainsi, les propriétés en cisaillement dans le plan sont conditionnées à la fois par la liaison fibre/matrice et par les propriétés intrinsèques de la matrice.

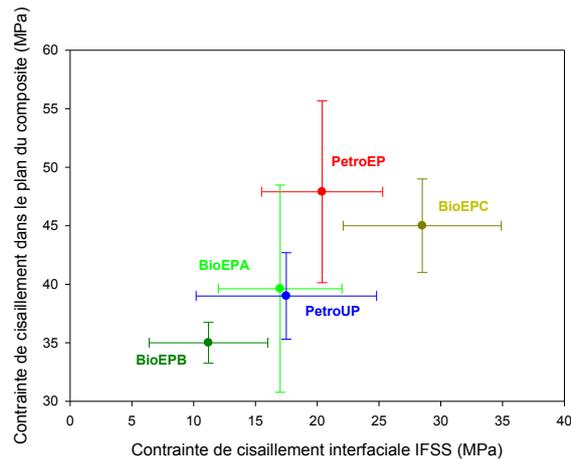


Figure 2. Contrainte de cisaillement dans le plan des composites  $\pm 45$  en fonction de la contrainte de cisaillement interfaciale

## 5. CONCLUSION

A l'échelle microscopique, le test de déchaussement a mis en évidence une adhérence satisfaisante pour tous les systèmes lin/époxy partiellement biobasées. Des tests supplémentaires ont été menés pour analyser l'influence de la liaison interfaciale à l'échelle macroscopique. Nous avons observé qu'à la fois la liaison fibre/matrice à l'échelle micro et les propriétés intrinsèques des matrices sont des critères décisifs pour les propriétés macroscopiques en cisaillement. Cette étude apporte des résultats encourageants pour l'utilisation de matrices époxy et polyester partiellement biobasées pour dans les composites renforcés par des fibres de lin. Des analyses de cycle de vie sont à conduire dans le futur pour quantifier si des gains environnementaux existent par rapport à l'utilisation d'une résine pétrochimique.

## REFERENCES

- ADEME, 2011. Evaluation de la disponibilité et de l'accessibilité de fibres végétales à usages matériaux en France.
- Baley, C., "Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase", *Compos. Part Appl. Sci. Manuf*, **33**, (2002), pp. 939–948.
- Bourmaud, A., Morvan, C., Bouali, A., Placet, V., Perré, P., Baley, C., "Relationships between micro-fibrillar angle, mechanical properties and biochemical composition of flax fibers", *Ind. Crops Prod*, **44**, (2013), pp. 343–351.
- Herrera-Franco, P.J., Drzal, L.T., "Comparison of methods for the measurement of fibre/matrix adhesion in composites", *Composites*, **23**, (1992), pp. 2–27.
- Keusch, S., Queck, H., Gliesche, K., "Influence of glass fibre/epoxy resin interface on static mechanical properties of unidirectional composites and on fatigue performance of cross ply composites", *Compos. Part Appl. Sci. Manuf*, **29**, (1998), pp. 701–705.
- Le Duigou, A., Davies, P., Baley, C., "Interfacial bonding of Flax fibre/Poly(l-lactide) bio-composites", *Compos. Sci. Technol*, **70**, (2010), pp. 231–239.
- Miller, B., Muri, P., Rebenfeld, L., "A microbond method for determination of the shear strength of a fiber/resin interface", *Compos. Sci. Technol*, **28**, (1987), pp. 17–32.
- Park, S.-J., Kim, T.-J., "Studies on surface energetics of glass fabrics in an unsaturated polyester matrix system: Effect of sizing treatment on glass fabrics", *J. Appl. Polym. Sci*, **80**, (2001), pp. 1439–1445.
- Thomason, J.L., Yang, L., "Temperature dependence of the interfacial shear strength in glass reinforced polypropylene and epoxy composites", Presented at the 19th International Conference on Composite Materials, Montreal, (2013), pp. 3518–3526.

# **INFLUENCE DU ROUISSAGE DES FIBRES DE LIN SUR LES PROPRIETES MECANIQUES DE COMPOSITES PP/LIN MIS EN ŒUVRE PAR INJECTION**

**N. Martin**, N. Mouret *Van Robaeys Frères S.A. 83 rue Saint Michel, 59122 Killem, France. Téléphone : 03 28 68 30 88, Télécopie : 03 28 62 51 00 Adresses électroniques : nmartin@vanrobaeys.fr, nicolas.martin@univ-ubs.fr, nmouret@vanrobaeys.fr*

P. Davies *IFREMER Centre de Bretagne Technopôle Brest Iroise, F-29280 Plouzané, France. Téléphone : 02 98 22 47 77, Télécopie : 02 98 22 45 35, Adresse électronique : peter.davies@ifremer.fr*

C. Baley *Univ. Bretagne-Sud, EA 4250, LIMATB, Rue de Saint-Maudé, F-56100 Lorient, France. Téléphone : 02 97 87 45 53, Télécopie : 02 97 87 45 00, Adresse électronique : christophe.baley@univ-ubs.fr*

**Mots clés : Fibres de lin, rouissage, matériaux composites, polypropylène, injection**

## **1. INTRODUCTION**

L'utilisation de fibres de lin comme renfort de matériaux composites se justifie par leurs hautes performances mécaniques (Baley, 2002) et environnementales (Le Duigou et al., 2011) comparativement aux fibres de verre E. Cependant, le développement de leur utilisation à l'échelle industrielle est limité par plusieurs verrous dont la présentation des fibres. Cette présentation des fibres est fortement liée à l'organisation de la tige de lin et la manière dont les fibres sont extraites. Au sein de la tige de lin les fibres sont réparties sous forme de faisceaux regroupant une trentaine de fibres, eux même répartis dans l'écorce à la périphérie de la tige. La partie centrale de la tige est constituée de matière lignifiée aussi appelée bois ou anas. La cohésion est assurée par des lamelles mitoyennes au sein et autour des faisceaux. Elles contiennent des ciments végétaux constitués majoritairement de pectines (Akin et al., 1996). Lors du rouissage, les tiges de lin sont étalées sur le champ afin que des champignons et microorganismes s'y développent et dégradent par la suite les ciments pectiniques par voie enzymatique (Meijer et al., 1995; Rosemberg and De França, 1967). Cette étape permet de faciliter la décortication des tiges, pendant laquelle les faisceaux fibreux et le bois sont séparés par teillage. Le rouissage conditionne alors la facilité à extraire les faisceaux de fibres mais aussi la séparation des fibres dans le faisceau (Pallesen, 1996). Pour des applications textiles, un niveau de rouissage élevé qualifié de « bleu » fait consensus au sein de l'industrie du lin. Cependant, pour un usage en tant que renfort de matériaux composites, il n'existe pas de recommandation au niveau du degré de rouissage des fibres.

Le but de cette étude est d'évaluer l'importance du degré de rouissage des fibres de lin pour le renforcement de polypropylène (PP) mis en œuvre par injection. Tout d'abord, pour 3 durées de rouissage, les faisceaux de fibres de lin ont été caractérisés par spectrophotométrie et observés par microscopie électronique à balayage (MEB). Les propriétés mécaniques des fibres unitaires ont été évaluées par traction. Ensuite, des mélanges PP/ fibres courtes de lin ont été réalisés par extrusion (compoundage), puis mis en œuvre sous la forme d'éprouvette par injection. Enfin, les propriétés mécaniques des matériaux composites ont été déterminées par des essais de traction.

## **2. PROPRIETES DES FIBRES ETUDIEES**

Les essais ont été effectués à partir d'une production industrielle de lin (Parcelle de 3,67 ha) dans le département du Nord (59) au printemps 2011. Après croissance à maturité des plantes, celles-ci ont été arrachées, laissées au sol pour le rouissage et prélevées après 1, 9 et 19 jours de rouissage. Ces

prélèvements sont nommés R1, R3 et R6 pour cette étude. Compte tenu des conditions météorologiques, le niveau de rouissage du prélèvement R6 a été considéré comme un niveau de rouissage optimum pour une application textile. L'ensemble de la parcelle a été récoltée à ce stade. Les tiges ont ensuite été décortiquées par teillage.

## 2.1 Rouissage de la plante

La figure (1) présente les observations effectuées au MEB. Les fibres sont organisées sous forme de faisceaux pour les 3 lots. Les échantillons R1 et R3 sont recouverts d'une couche superficielle de tissus corticaux. Pour l'échantillon R6, les fibres sont sous forme de faisceaux, mais les tissus corticaux ont été enlevés en partie pendant le teillage. Les lamelles mitoyennes sont en partie dégradées, laissant apparaître la paroi primaire des fibres.

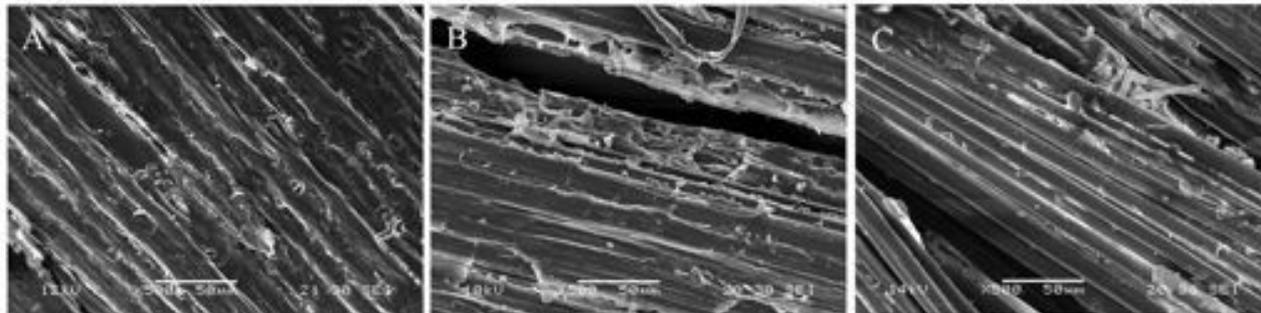


Figure 1 Image MEB des faisceaux de fibres pour R1 (A), R3 (B) and R6 (C).

Le tableau (1) présente l'analyse de la couleur obtenue par spectrophotométrie. L'évolution des paramètres L, a et b traduit l'évolution de couleur des échantillons. La diminution de la luminance L traduit l'assombrissement des fibres et la diminution du paramètre chromatique b correspond au passage de la couleur jaune à gris. Ces changements de couleur sont attribués à la colonisation des tiges par des champignons.

Lot	R1	R3	R6
Durée de rouissage (jours)	1	9	19
L (s.u)	70,6	62,4	50,8
a (s.u)	3,6	5,0	2,6
b (s.u)	24,9	24,1	13,0

Tableau 1 Coordonnées L,a,b mesurées par spectrophotométrie

## 2.2 Propriétés mécaniques des fibres unitaires

Avant essais, des fibres unitaires ont été extraites puis collées sur des supports en papier. La longueur de jauge est de 10 mm. Les essais de traction sont effectués avec un capteur 2N. Le tableau (2) présente les propriétés mécaniques en traction sur fibres unitaires. On note une augmentation des propriétés des fibres avec le rouissage. Le module d'Young et la contrainte à rupture des fibres unitaires augmentent, la dispersion des valeurs tend à diminuer avec l'augmentation du degré de rouissage. L'action enzymatique et la dégradation de certains composés pourraient être à l'origine d'une évolution de la composition biochimique et structurale des fibres et expliquer les différences de propriétés mécaniques des fibres.

Lot	Ø lot (µm)	E (GPa)	σ(MPa)	A (%)
R1	13,3 ± 3,9	38,6 ± 17,3	792 ± 374	2,2 ± 0,7
R3	13,0 ± 4,0	48,6 ± 11,8	935 ± 317	2,2 ± 0,7
R6	14,8 ± 4,4	55,6 ± 11,8	1036 ± 270	1,9 ± 0,5

*Tableau 2. Propriétés mécaniques en traction des fibres unitaires*

### 3. COMPOSITES A MATRICE POLYPROPYLENE RENFORCES PAR DES FIBRES COURTES DE LIN

Les composites ont été réalisés en mélangeant par extrusion des fibres courtes (3 mm) et du PP (PPC10642, Total Petrochemicals). La fraction massique de fibre est de 30 %. Des éprouvettes de traction sont ensuite injectées à partir des granulés extrudés. Les essais de traction sont réalisés selon la norme ISO 527.

#### 3.1 Morphologie des renforts après transformation

Le tableau (3) présente les longueurs (L), diamètres (d) et rapports d'aspect (L/d) des renforts après le moulage par injection des éprouvettes de traction. Les valeurs de rapport d'aspect sont en accord avec les valeurs rapportées précédemment pour les matériaux composites lin / PP injectés (Arbelaiz et al., 2005). Les valeurs de diamètre indiquent que les renforts sont en partie sous la forme de faisceaux pour les matériaux renforcés avec les fibres R1 et R3. Le diamètre moyen des renforts pour R6 est de 20,5 µm soit une valeur proche du diamètre des fibres unitaires (14,8µm). Ceci met en évidence une forte division des faisceaux. Dans la plante, la cohésion des faisceaux est assurée par les lamelles mitoyennes. Plus le degré de rouissage est élevé et plus celles-ci sont dégradées, ce qui facilite l'individualisation des fibres et explique un diamètre moyen plus petit et un rapport d'aspect supérieur pour R6.

Lot	L (µm)	d (µm)	L/d
R1	351,4 ± 188,4	44,7 ± 28,1	10,7 ± 8,1
R3	316,1 ± 166,1	36,7 ± 25,5	11,0 ± 6,9
R6	257,5 ± 115,9	20,5 ± 6,2	13,5 ± 7,0

*Tableau 3. Morphologie des fibres après l'étape de moulage par injection des composites*

#### 3.2 Propriétés mécaniques des composites

Le tableau (4) présente les propriétés mécaniques en traction des composites. Celles-ci augmentent avec le degré de rouissage des fibres de lin. Par ailleurs, la dispersion des valeurs de contrainte maximale est très faible par rapport à celle observée pour la contrainte à rupture des fibres unitaires. Dans le cas de cette étude, l'augmentation des propriétés mécaniques des composites lin/PP renforcés par des fibres courtes peut provenir de plusieurs origines. Les propriétés mécaniques des fibres unitaires augmentent avec le degré de rouissage. Un degré de rouissage élevé facilite la division des faisceaux durant l'extrusion et l'injection, ce qui permet d'obtenir des diamètres de renfort plus faibles. En conséquence, la surface de contact entre fibre/matrice est augmentée. Le rapport d'aspect des renforts est aussi augmenté par le temps de rouissage.

Echantillon	E (GPa)	$\sigma$ (MPa)	A (%)
PP	1,7 $\pm$ 0,1	21,7 $\pm$ 0,2	10,9 $\pm$ 1,8
R1	3,6 $\pm$ 0,2	26,8 $\pm$ 0,6	2,8 $\pm$ 0,3
R3	3,6 $\pm$ 0,1	28,0 $\pm$ 0,2	2,6 $\pm$ 0,6
R6	4,2 $\pm$ 0,2	34,9 $\pm$ 0,5	3,5 $\pm$ 0,2

*Tableau 4. Propriétés en traction des composites injectés*

#### 4. CONCLUSION

Dans cette étude, l'influence du degré de rouissage sur les propriétés des fibres unitaires de lin et de composites à matrice polypropylène renforcés par des fibres courtes de lin a été étudié. Plusieurs méthodes ont été utilisées pour estimer le degré de rouissage et évaluer son influence sur les propriétés mécaniques des fibres. Le changement de couleur visible du jaune au gris a été mis en évidence et quantifié par des mesures de spectrocromatimétrie. La dégradation des tissus corticaux et des lamelles mitoyennes a été observée par microscopie électronique à balayage. Le module d'Young et la contrainte à rupture des fibres unitaires augmentent avec le rouissage. Néanmoins, cette augmentation des propriétés mécaniques est complexe et les mécanismes gouvernant la modification des propriétés mécaniques des fibres ne sont pas encore identifiés. Les propriétés mécaniques des composites augmentent avec le degré de rouissage. Les propriétés mécaniques intrinsèques, la surface et le rapport d'aspect des fibres jouent un rôle clé. Un degré élevé de rouissage permet d'obtenir une séparation aisée des faisceaux de fibres au cours de l'extrusion et du moulage par injection, ce qui augmente les rapports d'aspect des fibres. Cet article souligne l'importance du degré de rouissage des fibres de lin afin d'optimiser la qualité des renforts de matériaux composites, de la même manière que dans le cas de l'utilisation des fibres de lin pour des applications textiles.

#### REFERENCES

- Akin, D.E., Gamble, G.R., Morrison III, W.H., Rigsby, L.L., Dodd, R.B., 1996. Chemical and Structural Analysis of Fibre and Core Tissues from Flax. *J. Sci. Food Agric.* 72, 155–165.
- Arbelaiz, A., Fernandez, B., Cantero, G., Llano-Ponte, R., Valea, A., Mondragon, I., 2005. Mechanical properties of flax fibre/polypropylene composites. Influence of fibre/matrix modification and glass fibre hybridization. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 36, 1637–1644.
- Baley, C., 2002. Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 33, 939–948.
- Le Duigou, A., Davies, P., Baley, C., 2011. Environmental Impact Analysis of the Production of Flax Fibres to be Used as Composite Material Reinforcement. *J. Biobased Mater. Bioenergy* 5, 153–165.
- Meijer, W.J.M., Vertregt, N., Rutgers, B., van de Waart, M., 1995. The pectin content as a measure of the retting and rettability of flax. *Ind. Crops Prod.* 4, 273–284.
- Pallesen, B.E., 1996. The quality of combine-harvested fibre flax for industrial purposes depends on the degree of retting. *Ind. Crops Prod.* 5, 65–78.
- Rosemberg, J.A., De França, F.P., 1967. Importance of Galacturonic Acid in Controlling the Retting of Flax. *Appl. Microbiol.* 15, 484–486.

# CARACTERISATION PAR CORRELATION D'IMAGES NUMERIQUES DES MECANISMES DE DEFORMATION DANS UN COMPOSITE A RENFORT TISSE DE CHANVRE

**A. Perrier**, F. Touchard, L. Chocinski-Arnault, D. Mellier, D. de Vasconcellos *Institut Pprime, ENSMA-CNRS-Université de Poitiers, 1 avenue Clément Ader BP 40109, F86961 Futuroscope Chasseneuil Cedex. Téléphone : 05 16 08 00 80, Télécopie : 05 49 49 82 38, Adresse électronique : amelie.perrier@ensma.fr*

**Mots clés : éco-composite, corrélation d'images numériques, champs de déformation, chanvre, tissé**

## 1. INTRODUCTION

L'utilisation des fibres végétales en tant que renforts dans les composites est relativement récente, et son intérêt est accru par un contexte environnemental et économique de plus en plus contraint. Le développement des éco-composites pour des applications structurales nécessite une meilleure connaissance de leur comportement mécanique.

En particulier, il existe peu de littérature sur les composites à renforts tissés d'origine végétale. Certains auteurs ont étudié l'interface renfort/matrice dans des composites chanvre/époxy (Bonnafous *et al.*, 2012) ou encore le comportement en fatigue (Vasconcellos *et al.*, 2013). Dans le cas de mesures de champs de déformation de composites à renforts tissés, les publications ne concernent que des renforts de fibres synthétiques, notamment des fibres de carbone pour Daggumati *et al.* (2011) et Nicoletto *et al.* (2009) et des fibres de verre pour Ivanov *et al.* (2009) et Lomov *et al.* (2008). Les résultats obtenus dans ces articles sont parfois contradictoires et ne permettent pas de tirer des conclusions claires quant à la répartition des zones de déformations maximales et minimales en fonction de la microstructure de ces matériaux.

L'objectif de ce travail est de caractériser le comportement mécanique d'un composite tissé chanvre/époxy à l'échelle du pli. Afin de déterminer les champs de déformations propres à ce matériau dans différentes configurations (orientation des plis à  $0/90^\circ$  ou  $\pm 45^\circ$ ) soumis à une sollicitation en traction, la technique de corrélation d'images numériques a été utilisée. Une préparation spécifique des échantillons et l'observation par caméra haute définition sont combinées à un logiciel de corrélation d'images pour obtenir les observations souhaitées.

## 2. MATERIAU ET CAMPAGNE EXPERIMENTALE

### 2.1 Matériau Et Préparation Des Éprouvettes

Le tissu utilisé est un taffetas de chanvre non traité présentant un grammage de  $270 \pm 7$  g/m<sup>2</sup>. Trois fils (ou un toron) de chaîne alternent avec trois fils de trame pour former la toile.

Les éprouvettes étudiées, de dimensions  $150 \times 20$  mm<sup>2</sup>, sont constituées de 7 plis de tissu et d'une matrice époxy (Epolam 2020). Deux séquences d'empilement différentes sont utilisées :  $[0/90]_7$  et  $[\pm 45]_7$  (orientation par rapport aux fils de chaîne). On note 1 la direction de traction. Une couche de mouchetis est déposée à des endroits prédéfinis sur une des faces de chaque éprouvette. Il s'agit d'une peinture acrylique mélangée à des particules de polymère de diamètre d'environ  $7 \mu\text{m}$ . Ce dépôt permet de garantir un état de surface adapté à la corrélation d'images, fait de motifs aléatoires et suffisamment petits.

### 2.2 Essais De Traction

Les essais de traction uniaxiale sont réalisés sur une machine Instron 4505, équipée d'une cellule de force de  $\pm 100$  kN et de mors auto-serrants. L'essai est piloté en vitesse de déplacement de la traverse à  $0,5$  mm/min et un extensomètre à couteaux d'écartement  $12,5$  mm positionné au centre

de l'éprouvette est utilisé pour la mesure de la déformation macroscopique. La zone utile de l'éprouvette est de  $90\pm 5$  mm, de sorte que 30 mm d'éprouvette sont maintenus dans les mors à chaque extrémité pour éviter les glissements. La caméra utilisée pour l'acquisition d'images est une caméra haute-définition de 10M pixels ( $4004 \times 2670$  pixels<sup>2</sup>) et de distance focale de 80 mm, fixée sur un plateau permettant de faire la mise au point à l'aide de vis micrométriques. L'éprouvette est éclairée par un anneau de LED blanches, et les prises de vues de la caméra sur la face avant du matériau sont enregistrées sans autre source de lumière pour éviter que les mesures ne soient parasitées par de la lumière traversant l'épaisseur de l'éprouvette depuis la face arrière.

Un chargement répété progressif est appliqué, de 0N jusqu'à rupture de l'éprouvette. A chaque charge et décharge, une image du mouchetis est prise par la caméra.

### 2.3 Technique De Corrélation d'Images

Le principe de la corrélation d'images numériques repose sur la comparaison de deux images prises à différents instants au cours d'un essai. L'image de référence est divisée par l'utilisateur en sous-fenêtres de corrélation, dont les dimensions sont telles que chaque sous-fenêtre contient un motif aléatoire unique dans toute l'image. Un logiciel, développé à l'Institut P', va ensuite reconnaître, dans l'image de l'état déformé de l'éprouvette, le motif de la fenêtre de corrélation de la première image. Cette reconnaissance est validée par le calcul d'un coefficient de corrélation, et la différence de position entre les deux motifs donne le vecteur déplacement du point considéré, ce qui permet, par dérivation des vecteurs déplacement de l'ensemble des points étudiés, de retrouver les champs de déformations.

## 3. RESULTATS ET DISCUSSION

### 3.1 Champs De Déformation De l'Éprouvette [0/90]<sub>7</sub>

La figure (1) présente de manière qualitative la répartition des zones de déformations minimales et maximales dans l'éprouvette tissée chanvre/époxy [0/90]<sub>7</sub>. On voit que les déformations minimales apparaissent au niveau des fils de chaîne lorsqu'ils affleurent la surface et que les déformations maximales se situent sur les fils de trame.

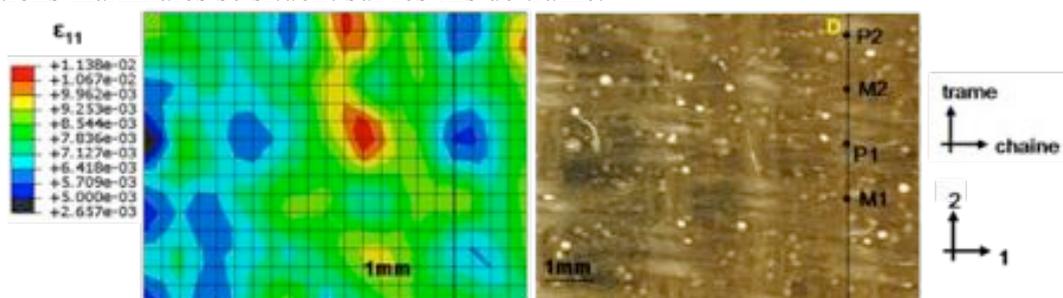


Figure 1. Champ de déformation longitudinale  $\epsilon_{11}$  à 1,2 % de déformation macroscopique mesurée par extensomètre sur l'éprouvette de composite tissé chanvre/époxy [0/90]<sub>7</sub> (soit 67 MPa) et microstructure correspondante. Direction de traction et direction chaîne suivant 1

Le champ de déformation est ensuite tracé le long de la ligne D de manière à observer l'évolution de la déformation au centre d'un toron en fonction de la contrainte appliquée. Cette ligne suit un toron de trame. On voit sur la figure (2) que la déformation est maximale lorsque le fil de chaîne passe sous le fil de trame et minimale lorsque le fil de chaîne est en surface. Pour chaque valeur de contrainte correspondant à chaque courbe, la légende indique l'équivalent en déformation macroscopique appliquée. Par exemple, pour une déformation macroscopique appliquée de 2%, la valeur de déformation la plus importante (2,48%) est supérieure à la moyenne des déformations sur l'ensemble de la zone étudiée de 40%, tandis que la déformation minimale mesurée possède un écart de 64% par rapport à la moyenne. Cela démontre une forte hétérogénéité dans les valeurs de déformation entre les différentes zones de la microstructure. Il faut noter que ces courbes sont

obtenues directement avec les valeurs déterminées en chaque nœud ; aucun lissage ou traitement n'a été appliqué.

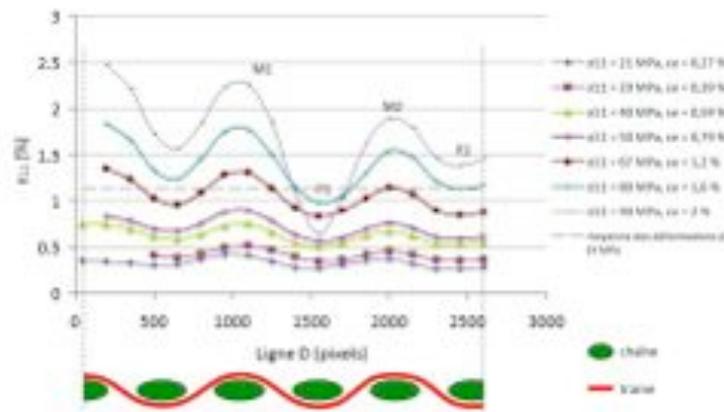


Figure 2. Évolution selon la contrainte appliquée des déformations longitudinales mesurées par corrélation d'images le long de la ligne D sur l'éprouvette de composite tissé chanvre/époxy [0/90]<sub>7</sub>.

### 3.2 Champs De Déformation De l'Éprouvette [±45]<sub>7</sub>

La figure (3) indique que les zones où la déformation est la plus faible correspondent aux zones où le fil de chaîne passe par-dessus le fil de trame tandis que les déformations maximales sont situées entre les fils, dans les zones où l'épaisseur de résine est plus grande. Cette dernière observation rejoint les résultats de Ivanov *et al.*, 2009, pour lesquels les déformations maximales sont également dans les zones riches en résine.

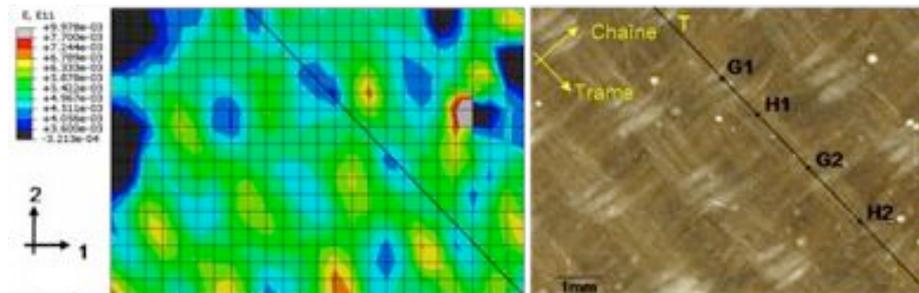


Figure 3. Champs de déformation longitudinale  $\epsilon_{11}$  à 0,39% de déformation macroscopique et microstructure correspondante. Direction de traction suivant 1.

La figure (4) montre l'évolution de la déformation le long de la ligne T suivant un toron de trame, tracée sur la figure (3). Comme pour le composite renforcé de tissu à 0/90°, les zones de déformations longitudinales minimales à la surface du matériau sont situées sur les torons de chaîne lorsqu'ils passent par dessus les torons de trame. Cela peut être relié au fait que, dans la direction longitudinale, les fils de chaîne sont particulièrement rigides. En ce qui concerne les déformations maximales, leurs localisations sont différentes selon le type d'orientation. En effet, elles se trouvent sur les torons de trame quand ils affleurent la surface pour les deux stratifiés, mais également dans les zones riches en résine pour le [±45]<sub>7</sub>. Cette différence peut s'expliquer par les sollicitations mécaniques locales différentes dans les deux orientations. D'une part, dans le [±45]<sub>7</sub>, c'est la matrice qui va supporter en grande partie les cisaillements locaux. D'autre part, le toron de trame lorsqu'il est sollicité en traction dans la direction de sa largeur va présenter une rigidité très faible puisque les trois fils qui le constituent vont pouvoir s'écarter. Les localisations de déformation déterminées par la technique de corrélation d'images montrent donc le lien direct entre les mécanismes de déformation du composite et la microstructure sous-jacente du tissu.

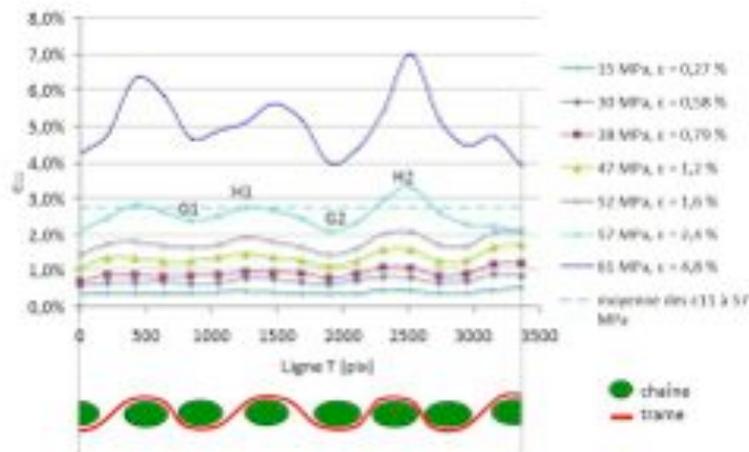


Figure 4. Évolution selon la contrainte appliquée de la déformation longitudinale mesurée par corrélation d'images le long de la ligne T sur l'éprouvette de composite tissé chanvre/époxy  $[\pm 45]_7$ .

#### 4. CONCLUSION

Les déformations d'un composite tissé sont très complexes à l'échelle de la microstructure du matériau, car elles varient selon les positions des fils de chaîne et de trame.

La technique de corrélation d'images numériques, qui permet de mesurer les champs de déplacement plans à la surface d'un matériau soumis à une sollicitation mécanique (ici en traction), a donc été appliquée, puis les champs de déformations ont été obtenus par dérivation.

Des mesures des champs de déformation ont été effectuées tout au long d'essais de traction sur des échantillons de composite tissé chanvre/époxy pour deux orientations différentes :  $[0/90]_7$  et  $[\pm 45]_7$ .

Ensuite, une analyse fine de ces champs de déformation a permis de montrer l'influence directe de la position des fils de trame et de chaîne sur les déformations mesurées. On observe les zones de déformations minimales lorsque les fils de chaîne passent sur les fils de trame dans les deux configurations d'empilement des plis. Les déformations maximales se situent soit sur les fils de trame pour le composite  $[0/90]_7$ , soit dans les zones riches en résine pour le  $[\pm 45]_7$ . Ces résultats permettent de mieux comprendre les mécanismes de déformation à l'échelle de la microstructure dans ce type de composite tissé chanvre/époxy.

#### REFERENCES

- Bonnafeous C., Vasconcellos D., Touchard F., Chocinski-Arnault L. "Experimental and numerical investigation of the interface between epoxy matrix and hemp yarn", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **43**, (2012), pp. 2046–2058.
- Daggumati S., Van Paepegem W., Degrieck J. et al. "Local strain in a 5-harness satin weave composite under static tension : Part I - Experimental analysis", *Composites Science and Technology*, **71**, (2011), pp. 1171-1179.
- Ivanov D., Ivanov S., Lomov S. et al., "Strain mapping analysis of textile composites", *Optics and Lasers in Engineering*, **47**, (2009), pp. 360-370.
- Ivanov D. S., Lomov S. V., Bogdanovich A. E. et al. "A comparative study of tensile properties of non-crimp 3D orthogonal weave and multi-layer plain weave E-glass composites. Part 2: Comprehensive experimental results", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **40**, (2009), pp. 1144-1157.
- Lomov S. V., Ivanov D. S. & Verpoest I. "Full-field strain measurements for validation of meso-FE analysis of textile composites", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **39**, (2008), pp. 1218-1231.
- Nicoletto G., Anzelotti G. & Riva E. "Mesoscopic strain fields in woven composites: Experiments vs. finite element modeling", *Optics and Lasers in Engineering*, **47**, (2009), pp. 352-359.
- Vasconcellos D., Touchard F., Chocinski-Arnault L. "Tension-tension fatigue behaviour of woven hemp fibre reinforced epoxy composite: a multi-instrumented damage analysis." *International Journal of Fatigue*, accepté 2013, <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2013.08.029>.

# Étude De La Durabilité De Composites Biosourcés Lors Du Vieillissement Couplé Thermo-Hydro-Mécanique

A. Regazzi, P. Ienny, S. Corn, J.C. Bénézet, A. Bergeret - *Centre des Matériaux des Mines d'Alès (C2MA), 6 avenue de Clavières, 30319 Alès Cedex - Téléphone : 04 66 78 56 22, Télécopie : 04 66 78 53 65, Adresse électronique : Arnaud.Regazzi@mines-ales.fr*

Mots clés : composite biosourcé; durabilité; vieillissement thermo-hydrigue; fluage; couplage

## 1 INTRODUCTION

La contrainte d'un développement et d'une conception durables des produits plastiques incite à l'utilisation de matériaux issus de ressources renouvelables. Bien qu'encore peu nombreux, les matériaux biosourcés, issus de la biomasse, constituent des alternatives intéressantes et prometteuses (Vilaplana *et al.*, 2010). Certains d'entre eux, du fait de leur biodégradabilité, sont très sensibles aux conditions environnementales et leurs propriétés mécaniques peuvent fortement varier et être irrémédiablement altérées (Castelan, 2010). Dans le domaine des composites, où la tenue mécanique est un paramètre primordial, il est indispensable de pouvoir quantifier l'évolution des propriétés mécaniques en fonction des sollicitations (environnementales et mécaniques) s'exerçant sur le produit au cours d'une utilisation en service (Weitsman, 2001). L'intérêt est de pouvoir anticiper le comportement du composite afin d'adapter le bon couple de matériaux à l'utilisation envisagée mais également de prévoir sa durée de vie.

L'objectif de ces travaux est d'étudier les conséquences de deux facteurs de vieillissement en fonction de la température : l'eau et les sollicitations mécaniques. L'influence de chacun de ces facteurs est étudiée séparément puis de manière combinée afin de mettre en évidence l'éventuelle occurrence d'une synergie ; c'est-à-dire une modification des propriétés qui soit supérieure à la simple association des effets de l'ensemble des facteurs considérés séparément.

## 2 MATÉRIAUX ET MÉTHODES

### 2.1 Matériaux et mise en œuvre

Pour cette étude, la matrice choisie pour le composite est le poly(acide lactique), communément appelé PLA. Son monomère, l'acide lactique, est issu de la fermentation du glucose ou du saccharose. Il est ensuite polymérisé généralement par ouverture de chaîne du lactide. Le grade utilisé (7000D) a été fourni par NatureWorks. Ses propriétés mécaniques sont très intéressantes pour un thermoplastique puisque son module d'Young est de 4,7 GPa et sa contrainte à rupture de 65 MPa; par contre c'est un matériau relativement fragile étant donné que sa déformation à rupture est de quelques pourcents.

Des fibres de lin coupées (Fibra-S6A), fournies par Fibres Recherches Développement (FRD), ont été utilisées en guise de renfort. Le lin figure parmi les fibres naturelles les plus intéressantes mécaniquement : leur module d'Young varie autour de 36 GPa et la contrainte à rupture autour de 750 MPa (données issues de la fiche technique).

Trois références ont été mises en œuvre, chacune avec un taux de renfort différent : 0, 20 et 30% en masse de fibre sur la masse totale du composite. Les fibres sont incorporées dans la matrice à l'état fondu durant une étape d'extrusion bi-vis. Le semi-produit est obtenu sous forme de granulés. Des

éprouvettes haltères au format 1/2 (ISO 527-2 1BA) sont ensuite mises en forme par injection; elles serviront d'échantillon pour l'ensemble des essais. Ces dernières sont enfin stockées dans une enceinte maintenue à température ambiante et un taux d'humidité relative inférieur à 3%. Cet état constitue l'état de référence des échantillons.

## 2.2 Méthodes de vieillissement et caractérisation

### 2.2.1 Absorption :

Les échantillons sont vieillis en immersion dans l'eau à une température régulée. L'absorption d'eau par les échantillons est suivie par mesure de la prise en masse (mesure gravimétrique). Leur gonflement est aussi évalué par des mesures dimensionnelles dans les 3 directions.

### 2.2.2 Analyse vibratoire :

Parallèlement aux mesures d'absorption au cours du vieillissement, le comportement visco-élastique est également déterminé mais cette fois-ci à l'aide d'une méthode de caractérisation moins conventionnelle. Cette technique d'analyse vibratoire exploite la dépendance des fréquences de résonance au module élastique du matériau. Cette méthode présente l'avantage d'être rapide et non destructive, ce qui est indispensable pour assurer un suivi de chaque éprouvette durant le vieillissement. Dans la pratique, l'échantillon est encastré à une extrémité et une impulsion est exercée à l'autre. La réponse vibratoire est enregistrée par un capteur laser de déplacement et convertie dans le domaine fréquentiel afin de déterminer la première fréquence de résonance (1er mode de flexion) et son amortissement. Un modèle par éléments finis de l'échantillon permet de déterminer le module élastique dynamique par recalage des fréquences calculées par rapport à celles mesurées.

### 2.2.3 Fluage et sollicitations couplées :

Un montage de traction a été mis au point afin de solliciter mécaniquement les échantillons à différentes températures dans un environnement sec ou immergé. Le montage réalisé comprend une enceinte fixée sur la traverse mobile d'une presse de traction et contenant le mors sur lequel est fixée l'éprouvette. La mesure de déformation entre les deux mors est assurée par un capteur LVDT à l'extérieur de l'enceinte. L'asservissement de la traverse est piloté en force. La sollicitation mécanique est assurée par une contrainte constante au cours de l'essai (essai de fluage). De brefs cycles de déchargement partiel (2 MPa) puis rechargement sont néanmoins répétés toutes les 30 minutes afin de suivre le comportement élastique du matériau de façon in situ au cours du vieillissement.

## 3 MÉTHODOLOGIE ET RÉSULTATS

### 3.1 Comportement sous sollicitation hydrique

L'influence de la durée d'immersion sur le comportement élastique dynamique a tout d'abord été évaluée par analyse vibratoire à température ambiante.

La figure (1) montre une faible influence de l'environnement hydrique sur le module élastique dynamique du PLA. À l'inverse, la rigidité des composites diminue d'autant plus que le taux de fibres et la température sont élevés, révélateur d'un phénomène de plastification (Verdu, 2000). Ces observations laissent supposer que ce phénomène semble affecter de manière bien plus notable les fibres que la matrice (Davies *et al.*, 2008). Enfin, concernant les vieillissements réalisés à 50°C, au-delà d'une certaine durée, il devient impossible d'effectuer une mesure de module en raison de la fragilité des échantillons, traduisant ainsi un endommagement sévère dans ces conditions.

L'irréversibilité du comportement élastique dynamique a ensuite été évaluée par dessiccation des échantillons. Les propriétés ainsi obtenues ne sont plus dues à la présence d'eau mais uniquement

engendrées par les endommagements physiques et chimiques intervenants dans le vieillissement hydrique. La figure (2) montre une réversibilité du comportement élastique après vieillissement en immersion à 20°C quasi-complète pour l'ensemble des matériaux, suggérant ainsi que la diminution précédemment observée était essentiellement liée à la plastification. Lorsque la température de vieillissement augmente, l'irréversibilité de la rigidité est de plus en plus marquée pour les composites. Cependant celle du PLA ne semble pas être affectée de manière notable.

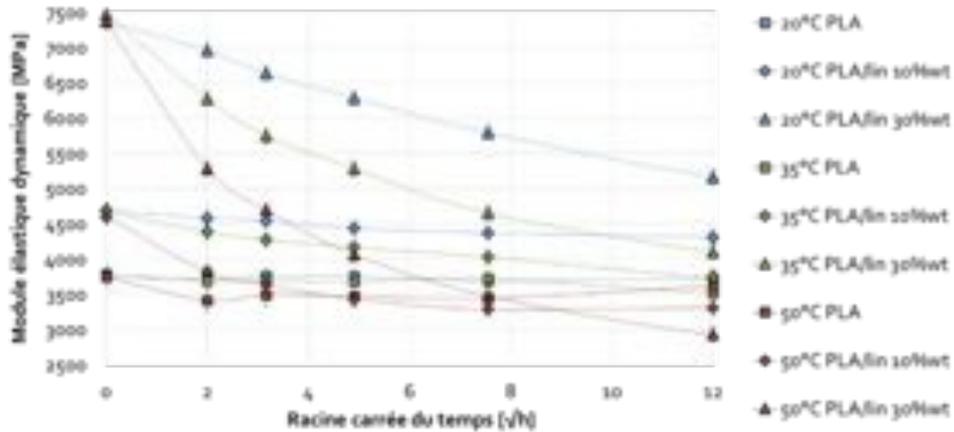


FIGURE 1 – Module élastique dynamique *ex situ* du PLA et des composites PLA/lin au cours du vieillissement en immersion dans l'eau

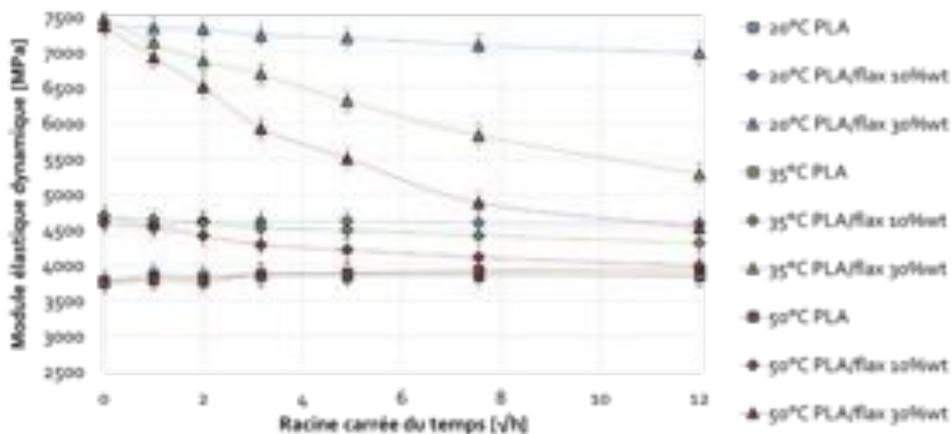


FIGURE 2 – Module élastique dynamique après dessiccation du PLA et des composites PLA/lin pour différentes durées de vieillissement en immersion dans l'eau

En définitive, le vieillissement thermo-hydrique des matériaux étudiés se traduit par une diminution du module élastique dynamique qui est la conséquence de phénomènes à la fois réversibles et irréversibles dont les fibres de lin semblent être les plus dépendantes.

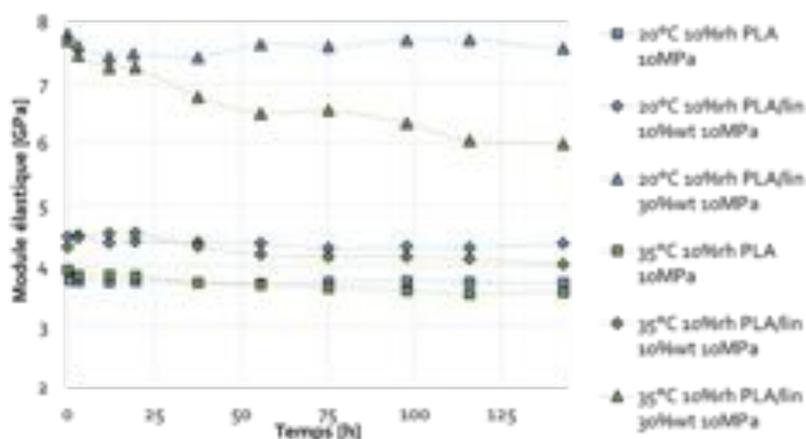


FIGURE 3 – Module d'élasticité du PLA et des composites PLA/lin au cours du fluage à 10 MPa en atmosphère sèche

### 3.2 Comportement sous sollicitation mécanique

L'influence de la durée de fluage sur le comportement élastique a été évaluée *in situ* par brefs déchargements périodiques. Dans ce cas, les échantillons sont soumis à une atmosphère sèche (10%hr) de manière à éviter le vieillissement hydrique.

Sur la figure (3), le comportement élastique des matériaux ne semble pas être affecté par la contrainte de fluage à l'exception d'une diminution contenue à 35°C pour le composite le plus renforcé.

### 3.3 Comportement sous sollicitations couplées

Dans une dernière démarche, l'influence de la sollicitation couplée sur le comportement élastique a été évaluée *in situ* par brefs déchargements périodiques.

L'ensemble des chutes de module est rassemblé dans les tableaux (1) et (2). Comme observé précédemment, la rigidité diminue dans le cas d'une sollicitation couplée, mais de manière plus importante que la simple association des effets de chaque sollicitation prise séparément. La différence entre la somme des effets de chaque sollicitation considérée indépendamment et l'effet de la sollicitation couplée est ainsi appelée synergie de dégradation. Cette synergie se révèle d'autant plus faible que le taux de fibre est élevé.

20°C	Fluage	Immersion	Fluage et immersion	Synergie de dégradation	Rupture
PLA	-1,3%	-5,0%	-27,4%	-21,1%	20h
PLA/lin 10%wt	-3,8%	-10,7%	-25,5%	-11,0%	115h
PLA/lin 30%wt	-1,3%	-31,9%	-38,3%	-5,1%	aucune

TABEAU 1 – Chute de rigidité engendrée par les différentes sollicitations appliquées à 20°C

35°C	Fluage	Immersion	Fluage et immersion	Synergie de dégradation	Rupture
PLA	-4,2%	-17,1%	-43,4%	-22,1%	75h
PLA/lin 10%wt	-10,1%	-25,1%	-47,7%	-12,5%	aucune
PLA/lin 30%wt	-18,0%	-50,7%	-68,8%	-0,1%	aucune

TABEAU 2 – Chute de rigidité engendrée par les différentes sollicitations appliquées à 35°C

## 4 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Cette étude a permis d'appréhender les effets d'un environnement thermo-hydrique et de sollicitations mécaniques sur du poly(acide lactique) avec ou sans renfort de fibres courtes de lin. Les

moyens de vieillissement et de caractérisations mis en place ont permis de réaliser un suivi des propriétés élastiques et ont montré une synergie de dégradation lors de l'action simultanée de ces sollicitations. L'objectif prochain est de pouvoir quantifier précisément les évolutions de ces propriétés en fonction de la température à l'aide d'un modèle par éléments finis idoine.

## REFERENCES

Castelan G., "Polymères biodégradables", *Techniques De L'Ingénieur*, 4150, BIO, (2010), pp. 1-20.

Davies P., Le Duigou A. et Baley C., "Vieillissement en eau de mer d'un biocomposite PLLA/lin", *Revue des composites et des matériaux avancés*, 18, 2, (2008), pp. 239-244. doi :10.3166/rcma.18.239244

Verdu J., "Action de l'eau sur les plastiques", *Techniques De L'Ingénieur*, 3165, AM, (2000), pp. 1-8.

Vilaplana F., Strömberg E. et Karlsson S., "Environmental and resource aspects of sustainable biocomposites", *Polymer Degradation and Stability*, 95, 11, (2010), pp. 2147-2161. doi :10.1016/j.polymdegradstab.2010.07.016

Weitsman Y. J., "Effects of Fluids on Polymeric Composites - A Review", *Comprehensive Composite*

*Materials*, chapter 2.11, (2001), pp. 369-401. doi :10.1016/B0-08-042993-9/00068-1

## Effet des ultrasons sur les fibres de lin et de coco

S. Renouard, E. Lainé *Laboratoire de Biologie des ligneux et des grandes cultures UPRES EA 1207, équipe lignanes des linacées, université d'Orléans (antenne scientifique universitaire de Chartres), 21 rue Loigny la Bataille 28000 Chartres [sullivan.renouard@univ-orleans.fr](mailto:sullivan.renouard@univ-orleans.fr)  
[eric.laine@univ-orleans.fr](mailto:eric.laine@univ-orleans.fr)*

JP. Blondeau *Conditions Extrêmes et Matériaux : Haute Température et Irradiation -CNRS UPR3079, 1D avenue de la Recherche Scientifique 45071 Orléans cedex 2 [jean-philippe.blondeau@univ-orleans.fr](mailto:jean-philippe.blondeau@univ-orleans.fr)*

**P.Ouagne** *Laboratoire PRISME EA4229 Orléans, 8 rue Léonard de Vinci, 45072 Orléans Cedex. [pierre.ouagne \(@univ-orleans.fr\)](mailto:pierre.ouagne@univ-orleans.fr)*

**Mots clés :** Fibres de coco, fibres de lin, géofilet, hémicellulose, ultrasons

### **Résumé de la présentation :**

Dans le cadre du projet d'intérêt régional GEFIL, nous souhaitons réaliser une analyse comparative entre les fibres de lin et de coco, afin de déterminer le potentiel des fibres de lin produites localement pour substituer les fibres de coco (importées d'Inde) dans la composition des géotextiles stabilisant les berges des rivières.

A cet effet, nous allons comparer et caractériser la résistance à la dégradation des fibres de lin et de coco.

Pour ce faire, nous procéderons à une dégradation aux ultrasons, ces derniers permettant de créer en solution des bulles de cavitation qui, en explosant, détériorent les fibres. De plus, ce dégazage peut aussi induire la formation de radicaux libres oxydants.

Nous avons déterminé les conditions optimales de dégradation (temps d'incubation, puissance) des fibres de lin et de coco aux ultrasons, l'évolution de la composition chimique des fibres au cours de la dégradation (par spectrométrie infrarouge) ainsi que l'impact de la dégradation sur les propriétés mécaniques des fibres. Les analyses indiquent que les ultrasons induisent, chez les fibres de lin et de coco, une disparition significative de la cellulose, de l'hémicellulose, de la lignine et des pectines avec un impact plus marqué sur l'hémicellulose.

Globalement, les fibres de lin sont moins sensibles à la dégradation par les ultrasons que les fibres de coco.

Les résultats des dégradations aux ultrasons ont ensuite été mis en perspective avec les propriétés mécaniques en traction des fils de coco et de lin dégradés.

# EFFET DU VIEILLISSEMENT HYGROTHERMIQUE SUR LES PROPRIETES MECANQUES D'ECO-COMPOSITES A FIBRES DE LIN

E. H. Saidane, D. Scida, M. Assarar et R. Ayad. Université de Reims Champagne-Ardenne, Laboratoire d'Ingénierie et Sciences des Matériaux, LISM EA 4695, IUT de Troyes, 9 rue de Québec BP396, 10026 Troyes Cedex. Téléphone : 07 60 89 40 42, el-hadi.saidane@univ-reims.fr, daniel.scida@univ-reims.fr

**Mots clés : Composites à fibre de lin, résine époxy, propriétés mécaniques, vieillissement hygrothermique, loi de Fick.**

## 1. INTRODUCTION

Aujourd'hui, les activités de recherche, tant au niveau national qu'international, portent de plus en plus d'intérêt à l'utilisation des fibres végétales comme renfort dans les matériaux polymères. Ces fibres présentent des propriétés mécaniques spécifiques concurrentielles par rapport à celles des fibres de verre. Leur utilisation offre de nombreux avantages fonctionnels : gain de masse, réduction de gaz à effet de serre et faible coût de revient. De plus, les fibres végétales ont l'avantage d'être renouvelables et recyclables [1]. Celles les plus utilisées comme renfort de matériaux composites sont généralement les fibres de lin.

Toutefois, le principal inconvénient des fibres végétales est leur sensibilité à l'humidité, ce qui génère une baisse significative des propriétés mécaniques. L'absorption d'eau par ces fibres végétales provoque un gonflement de fibres, une décohésion de l'interface fibres/matrice et une instabilité dimensionnelle. Wang et al. [2] ont montré que la reprise d'humidité est la principale cause de l'instabilité dimensionnelle des composites (à base de polyéthylène renforcé par des coques de riz). Ils précisent que la température joue un rôle important dans le processus d'absorption d'eau et montrent que plus la température augmente, plus la reprise d'humidité est importante. Alix et al. [3] ont étudié le comportement de composites à base du polyester renforcé par des fibres de lin traitées et non traitées dans un environnement humide. Ils ont constaté que le traitement chimique a amélioré les propriétés mécaniques et la résistance à l'eau des composites étudiés. Assarar et al. [4] ont montré que le vieillissement hydrique dégrade de manière très significative les propriétés mécaniques des matériaux composites renforcés par des fibres de lin, par rapport à des composites à fibre de verre. Un changement du comportement mécanique en traction a également été constaté sur les matériaux vieillis [5].

Tous ces travaux montrent que les problèmes de vieillissement et d'absorption d'humidité est primordial pour le développement des agro-composites. Malgré les activités de recherche dans ce domaine, le comportement des agro-composites reste peu exploré dans la littérature.

Cette étude porte sur des éco-composites renforcés par des fibres quasi-unidirectionnelles de lin, dont l'objectif est d'évaluer d'une part l'influence de l'orientation des fibres sur l'absorption d'eau et d'autre part, l'impact du vieillissement hydrique et hygrothermique sur les propriétés mécaniques.

## 2. MATERIAUX ET ESSAIS

Le matériau utilisé dans cette étude est un composite quasi-unidirectionnel (CFUL) constitué de fibre de lin et d'une résine époxyde (SR1500 associée au durcisseur DS 2505) provenant de la société SICOMIN. La mise en œuvre du matériau été réalisée par moulage sous vide, par la technique dite du "sac". Les différentes couches sont stratifiées et imprégnées à température ambiante, puis moulées sous vide entre le moule et le contre moule après interposition de divers tissus de moulage. Ensuite, l'ensemble est mis dans une poche dans laquelle on fait un vide (dépression de 30 kPa) pendant 8 heures à température ambiante. L'interposition d'un moule et d'un

contre moule permet de contrôler l'épaisseur des plaques réalisées. Des éprouvettes rectangulaires ont été ensuite découpées selon trois orientations différentes par rapport à la direction des fibres ( $0^\circ$ ,  $90^\circ$  et  $45^\circ$ ) conformément à la désignation D3039-76 préconisée par la norme ASTM. Le taux volumique de fibres dans le composite est d'environ 25%. La désignation de chaque matériau est CFUL suivie de l'orientation de fibres  $0^\circ$ ,  $90^\circ$  ou  $45^\circ$  (Composite à Fibres Unidirectionnelles de Lin).

## 2.1 Protocole expérimental

Dans cette étude, trois types de vieillissement ont été réalisés :

- Deux vieillissements hydriques par immersion totale des échantillons dans de l'eau à température ambiante ( $\approx 20^\circ\text{C}$ ) et à  $80^\circ\text{C}$ .
- Un vieillissement hygrothermique dans une enceinte climatique où la température et l'humidité relative sont respectivement programmées à  $80^\circ\text{C}$  et à 75%.

Lors de ces essais, le suivi de la sorption d'eau des matériaux a été effectué par la méthode de la gravimétrie, l'absorption d'eau étant déterminée par le pourcentage en masse d'eau absorbée.

Afin d'évaluer l'impact du vieillissement sur les propriétés mécaniques des matériaux étudiés, des essais de traction uniaxiale ont été menés sur des éprouvettes rectangulaires. Les essais ont été effectués avec une vitesse de traction de 2 mm/min sur une machine universelle de type INSTRON modèle 3382 de capacité 100 kN. La déformation a été mesurée à l'aide d'un extensomètre dont la base est de 50 mm. Pour chaque type de vieillissement, cinq éprouvettes ont été testées. Les valeurs du module d'élasticité, de la contrainte maximale et de la déformation à la rupture sont déterminées pour chaque éprouvette.

## 3. RESULTATS ET DISCUSSION

### 3.1 Absorption d'eau

Plusieurs modèles ont été développés afin de décrire le phénomène d'absorption d'eau des composites. Dans le cas d'une plaque plane d'épaisseur  $h$  et de dimensions importantes par rapport à celle-ci, on peut faire l'hypothèse que la teneur en eau ne varie qu'en fonction de la direction  $z$  suivant l'épaisseur de la plaque si le comportement du matériau est Fickien. Dans ce cas, le problème peut être considéré comme unidirectionnel. Le modèle de diffusion 1-D de Fick, utilisé dans cette étude et qui traduit la prise de masse ( $M_t$ ) d'un échantillon due à l'absorption d'eau au temps  $t$  par rapport à la saturation, est décrit dans [5]. La figure 1 présente l'évolution de la quantité d'eau absorbée (en %) en fonction de la racine carrée du temps divisée par l'épaisseur selon trois directions ( $0^\circ$ ,  $90^\circ$  et  $45^\circ$ ) pour trois types de vieillissement (immersion totale dans l'eau à  $20^\circ\text{C}$  et  $80^\circ\text{C}$ , 75% d'HR à  $80^\circ\text{C}$ ). Après 52 jours de vieillissement, la figure 1 montre que les paramètres d'absorption d'eau dans les trois directions ( $0^\circ$ ,  $90^\circ$  et  $45^\circ$ ) sont en adéquation avec un comportement du type Fickien, avec une courbe initiale linéaire suivie d'un plateau d'équilibre. La courbe en trait plein présente la courbe théorique déterminée à partir de la seconde loi de diffusion de Fick [5]. Elle est déduite du coefficient de diffusion pour la partie linéaire et de l'approximation de Shen et Springer [6], pour la seconde partie. La masse à saturation et le coefficient de diffusion diffèrent entre les trois directions. Ces courbes montrent que la masse à saturation et les coefficients de diffusion dépendent du type du vieillissement (Figure 1) et de l'orientation des fibres (Figure 2). En effet, l'eau a tendance à se diffuser dans la direction des fibres, en particulier, dans la partie creuse des fibres appelée lumen. De plus, la surface de diffusion perpendiculaire aux fibres diffère entre les trois orientations (Figure 2). L'aire de ces surfaces varie, ce qui explique les différences des paramètres d'absorption entre les trois directions ; plus celle-ci est grande, plus la diffusion est importante. Ce constat a été également vérifié en colmatant les bords des échantillons de même largeur et de même longueur afin de privilégier la diffusion d'eau dans une direction souhaitée. Les résultats montrent que la diffusion se propage par la surface perpendiculaire aux fibres et devient la plus importante dans la direction des fibres.

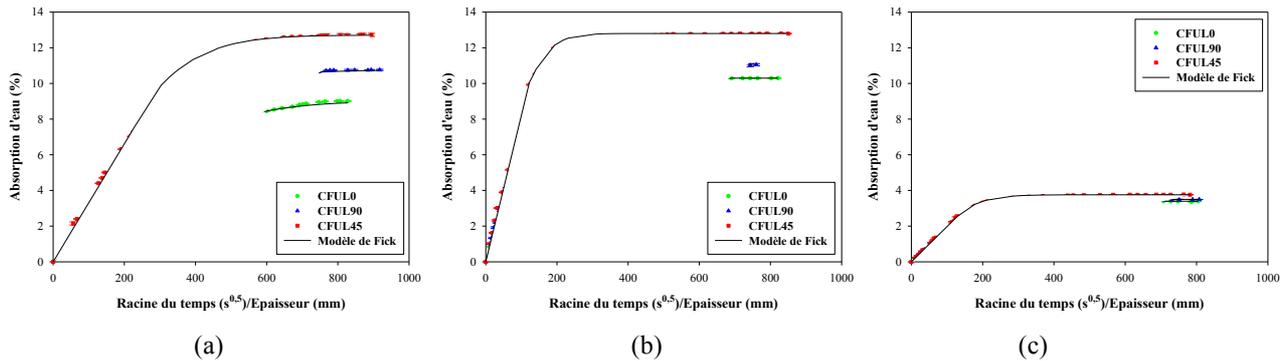


Figure1 : Cinétique d'absorption d'eau pour les trois matériaux : a) Immersion à 20°C, b) Immersion à 80°C et c) 75% d'HR + 80°C

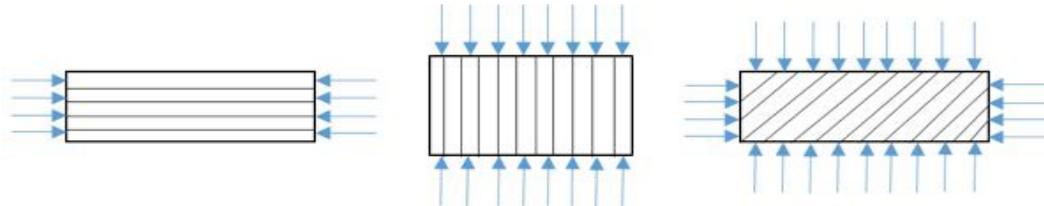


Figure2 : Surface et direction de diffusion pour les trois orientations (0°, 90° et 45°)

### 3.2 Propriétés mécaniques

La figure 3 présente les courbes contrainte-déformation issues des essais de traction sur les matériaux non vieillis et vieillis. Concernant le composite orienté à 0° (CFUL0), les courbes de la figure 3a présentent deux zones linéaires : la première est purement élastique et permet de mesurer le module longitudinal en traction, tandis que la seconde est visco-élasto-plastique, avec une contrainte maximale d'environ 135 MPa pour le non vieilli. Le changement le plus significatif au niveau comportemental est constaté lors des vieillissements en immersion, puisque le matériau a tendance à se rigidifier ; ce changement de pente peut être attribué à une réorientation des microfibrilles [5]. Pour les composites CFUL90 et CFUL45, les courbes montrent un comportement linéaire puis non linéaire jusqu'à la rupture (figure 3b et 3c). Les contraintes maximales sont de l'ordre de 20 MPa et de 35 MPa, respectivement. Les trois vieillissements n'entraînent pas de changement important du comportement mécanique en traction des matériaux étudiés, sauf au niveau de la pente des courbes.

Les résultats synthétisés sur la figure 4 indiquent que les trois vieillissements dégradent d'une manière significative les propriétés mécaniques des trois matériaux, en provoquant une diminution du module d'Young et des variations de la contrainte maximale. Par exemple, après 52 jours de vieillissement hydrique à température ambiante, la réduction du module d'Young longitudinal est de l'ordre de 54 % pour le CFUD0 et de 43% pour le CFUL45 et augmentent à 72% et 60% respectivement dans le cas du vieillissement hydrique à 80°C (figure 4a). Cette réduction est due au gonflement des fibres lorsque l'eau se diffuse dans la partie creuse des fibres élémentaires de lin (lumen), qui provoque des décohésions fibre-matrice et des fissures au niveau de la matrice. D'autre part, on constate une augmentation de la déformation à la rupture (figure 4c) due à des molécules d'eau agissant en tant que plastifiant dans les composites pendant les périodes d'immersion [7].

Le vieillissement hygrothermique (75% d'HR + 80°C) engendre aussi une diminution du module d'Young longitudinal de 14% pour le CFUL0 et de 37% pour le CFUL45. Le tableau 1 présente le pourcentage de l'augmentation (+) et de la diminution (-) des propriétés mécaniques pour les trois matériaux.

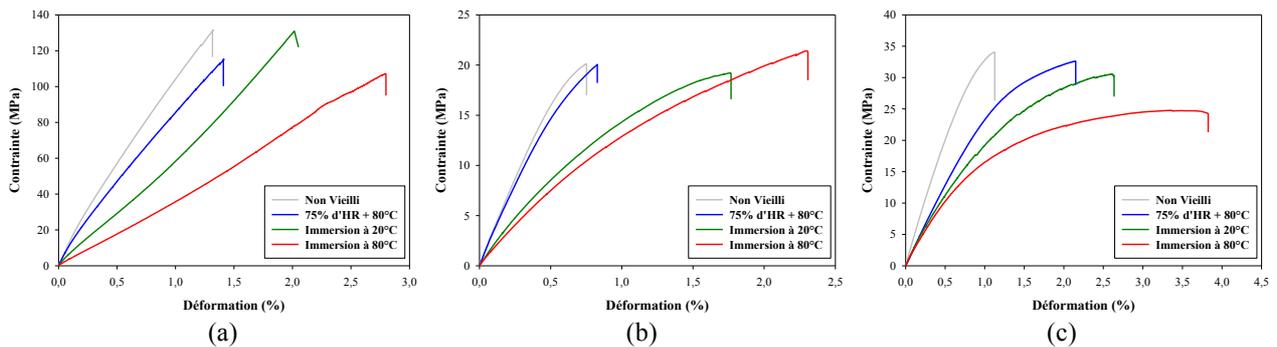


Figure 3 : courbe contrainte-déformation déduites des essais de traction effectués sur les composites non vieillis et vieillis : a) CFUL0, b) CFUL90, c) CFUL45

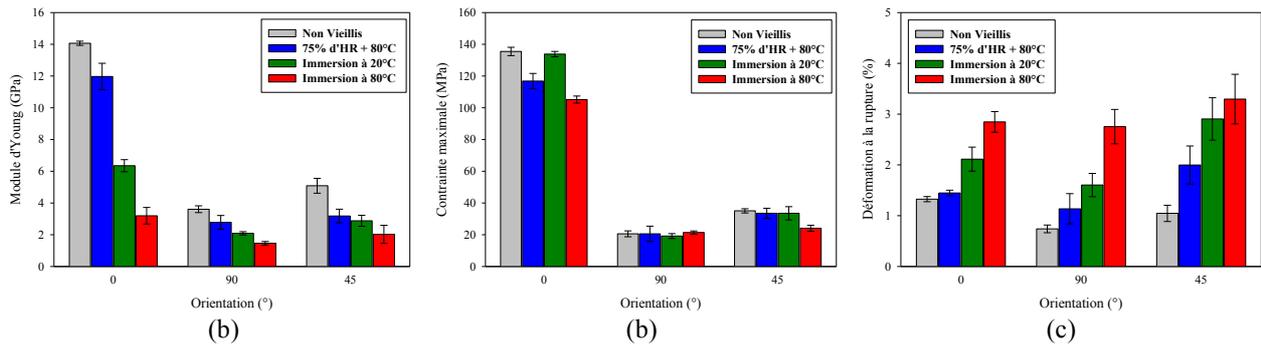


Figure 4 : Evolution des propriétés mécaniques en fonction du vieillissement : a) module d'Young, b) contrainte maximale et c) déformation à la rupture

Tableau 1 : pourcentage de l'augmentation (+) et de la diminution (-) des propriétés mécaniques pour les trois matériaux

Vieillessement	75% d'HR + 80°C			Immersion à 20°C			Immersion à 80°C		
	E	$\sigma$	$\epsilon$	E	$\sigma$	$\epsilon$	E	$\sigma$	$\epsilon$
0°	-14%	-13%	+9%	-54%	-1%	+59%	-72%	-21%	+114%
90°	-23%	0%	+54%	-42%	-6%	+116%	-59%	+4%	+272%
45°	-37%	-4%	+91%	-43%	-4%	+178%	-60%	-31%	+215%

## 4. CONCLUSION

Dans cette étude, nous avons évalué l'impact de deux types de vieillissement (hydrique et hygrothermique) sur les propriétés mécaniques de trois matériaux (CFUL0, CFUL90 et CFUL45). Les résultats montrent que la masse à saturation et le coefficient de diffusion dépendent à la fois de l'orientation des fibres, de la géométrie des éprouvettes et du type du vieillissement. Nous avons également montré que les vieillissements étudiés dégradent les propriétés mécaniques des trois matériaux, en provoquant une diminution du module d'Young, des variations de la contrainte maximale et l'augmentation de la déformation à la rupture.

## REFERENCES

- [1] Bourmaud A & Baley C. "Rigidity analysis of polypropylene/vegetal fibre composites after recycling", *Polymer Degradation and Stability*, **94**, (2009), pp. 297-305.
- [2] Wang W, Sain M, and Cooper P.A. "Hygrothermal weathering of rice hull/hdpe composites under extreme climatic conditions", *Polymer Degradation and Stability*, **90**, (2005), pp. 540-545.
- [3] Alix S, Lebrun L, Morvan C and Marais S, "Study of water behaviour of chemically treated flax-fibres-based composites: a way to approach the hydric interface", *Compos Sci Technol* **71**, (2011), pp. 893-899.
- [4] Assarar M, Scida D, El Mahi A, Poilâne C et Ayad R. "Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: Flax-fibres and glass-fibres". *Materials and Design*, **32**, (2011), pp. 788-795.
- [5] Scida D, Assarar M, Poilane C et Ayad R. "Influence of hygrothermal ageing on the damage mechanisms of flax-fibre reinforced epoxy composite", *Composite Part B*, **48**, (2013), pp. 51-56.
- [6] Shen C.H & Springer G.S. "Moisture absorption and desorption of composite materials". *Journal Composites Materials*, **10**, (1976), pp. 2-20.
- [7] Beg M.D.H and Pickering K.L. "Reprocessing of wood fibre reinforced polypropylene composites. Part II: Hygrothermal ageing and its effects", *Composites Part A*, **39**, (2008), pp. 1565-1571.

# Caractérisation en fatigue de thermoplastiques renforcés de fibres de verre courtes (TRFC), compréhension des mécanismes et de la localisation des sites de fatigue à partir de la thermographie infrarouge et les faciès de rupture

L. SERRANO ABELLO<sup>1\*</sup>, Y. MARCO<sup>1</sup>, V. LE SAUX<sup>1</sup>, G. ROBERT<sup>2</sup>, P. CHARRIER<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Ensta Bretagne-Laboratoire Brestoise de mecanique et systemes, LBMS, 2 Rue Francois Verny, 29200 Brest,

<sup>2</sup>Solvey-Rhodia, Avenue Ramboz, 69190 St Fons,

<sup>3</sup>TrelleborgVibracoustic, 1 rue du Tertre Z.I Nantes Carquefou BP. 10419 44474 Carquefou

\* leonell.serrano@ensta-bretagne.fr

**Mots clés : TRFC, fatigue, thermographie infrarouge, faciès de rupture, point chaud**

## 1 INTRODUCTION

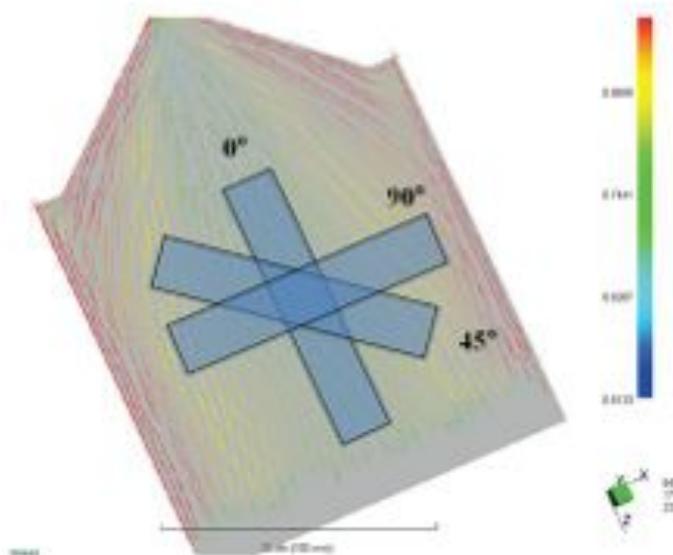
La volonté d'allègement des véhicules et d'optimisation des coûts a conduit au remplacement pour de nombreuses applications, des matériaux métalliques par des composites à matrices thermoplastiques. Le compromis entre la tenue thermomécanique et le coût massique du matériau a conduit à sélectionner des matrices Polyamides renforcées par des fibres de verre courtes et mises en forme par injection [1-5]. La caractérisation en fatigue de ce type de matériaux présente de nombreuses difficultés, le premier est le comportement fortement non linéaire de la matrice par rapport aux conditions de service visées (température et humidité). La deuxième est liée à la nature composite de ces matériaux et à l'influence du procédé de fabrication (orientation des fibres)[6-7]. Dans cette étude nous utilisons des éprouvettes avec une orientation des fibres et un rapport d'humidité contrôlée. Les éprouvettes sont soumises à des chargements en fatigue avec un rapport de charge  $R=0$ . Avec l'aide d'une caméra infrarouge l'évolution de la température dans la zone utile de l'éprouvette est suivie jusqu'à la rupture, on s'aperçoit de l'apparition d'un point chaud (zone considérablement réduite par rapport à la zone utile de l'éprouvette et ayant une température plus importante), juste avant la rupture de l'éprouvette. Au niveau du point chaud la fissuration a lieu, le but de cette étude est d'établir de liens entre le point chaud et les faciès de rupture (localisation de la rupture ductile et la rupture fragile par rapport à celui-ci), les faciès de rupture sont observés avec l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB).

## 2 OBTENTION DES EPROUVETTES ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL

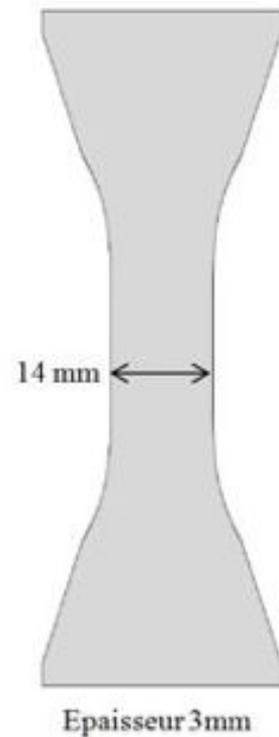
Les éprouvettes sont obtenues à partir d'une plaque injectée (découpées et après usinées) dans le but d'obtenir une orientation moyenne des fibres maîtrisée dans la zone utile des éprouvettes (**cf. figure 1 et 2**), sur la tranche des éprouvettes les fibres sont orientées sur la direction principal d'écoulement au niveau de la peau et à  $90^\circ$  au niveau du coeur (**cf. figure 3**). Les éprouvettes sont conditionnées à un rapport d'humidité de 50% (RH50). Les essais sont réalisés à l'aide d'une machine de fatigue uniaxiale INSTRON (capacité 100KN) pilotés en effort et l'acquisition de la température se fait avec une caméra infrarouge FLIR Systems SC7600BB disposant d'une matrice de détecteurs  $640 \times 512$  pixels (**cf. figure 4**). Une procédure minutieuse de calibration (correction pixel à pixel autocompensée en température, mesure de l'émissivité du matériau) est réalisée. Les caractéristiques de l'objectif utilisé (50mm) sont données dans le tableau 1.

Caractéristiques	50mm
Résolution spatiale/Résolution thermique	$15\mu\text{m}/10\text{ mK}$
Bande spectrale	$3.5\text{-}5\mu\text{m}$
Dimensions de la zone observée	$40 \times 60\text{ mm}$

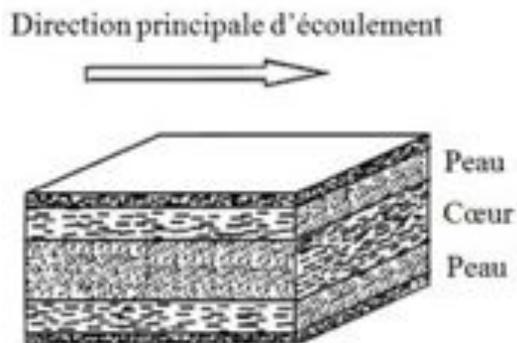
**Tab. 1** – *Caractéristique de l'objectif utilisé*



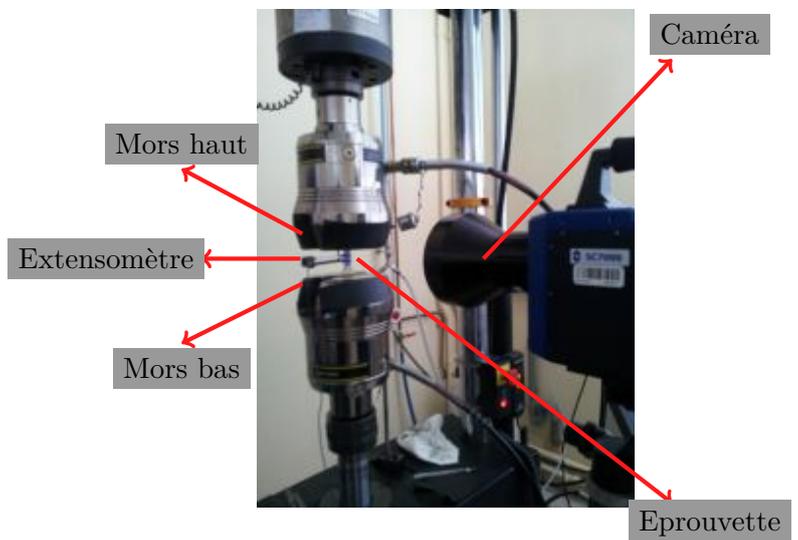
**Fig. 1** – *Obtention des éprouvettes à partir d'une plaque injectée, l'orientation des fibres dépend de l'angle de découpe par rapport à la direction principale d'écoulement*



**Fig. 2** – *Géométrie finale des éprouvettes*



**Fig. 3** – *Orientation des fibres sur la tranche des éprouvettes*



**Fig. 4** – *Dispositif expérimental*

### 3 PROTOCOLE EXPERIMENTAL

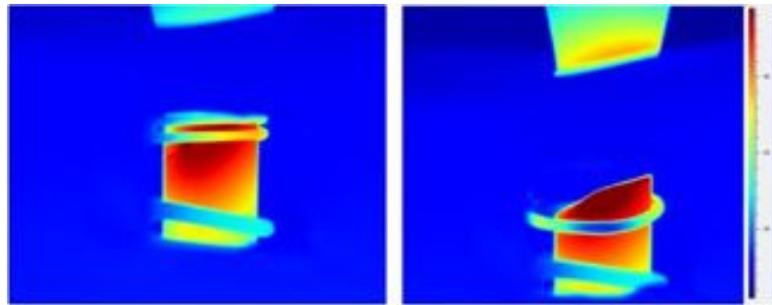
Les essais sont réalisés sur des éprouvettes découpées à 45° de la direction principale d'écoulement, c'est-à-dire que l'orientation des fibres en peau est à 45° de la direction du chargement. Les éprouvettes sont soumises à des chargements cycliques avec un rapport de charge  $R=0$  et une fréquence de 1Hz (pour limiter l'augmentation de température), la température est mesurée sur la zone utile de l'éprouvette. Le point chaud apparaît quelques cycles avant la rupture de l'éprouvette, pour pouvoir le capter il faut mesurer la température avec une fréquence d'acquisition assez élevée. Lorsqu'on mesure la température, le film est d'abord sauvegardé dans la

mémoire vive de l'ordinateur donc la taille maximal d'un film est limité par celle-ci. Dans cette étude le suivi thermique est réalisé avec une fréquence d'acquisition de 20Hz pour des chargements cycliques correspondants à une durée de vie de quelques centaines de cycles, ces deux conditions sont cohérentes avec la mémoire vive disponible et le temps d'apparition du point chaud.

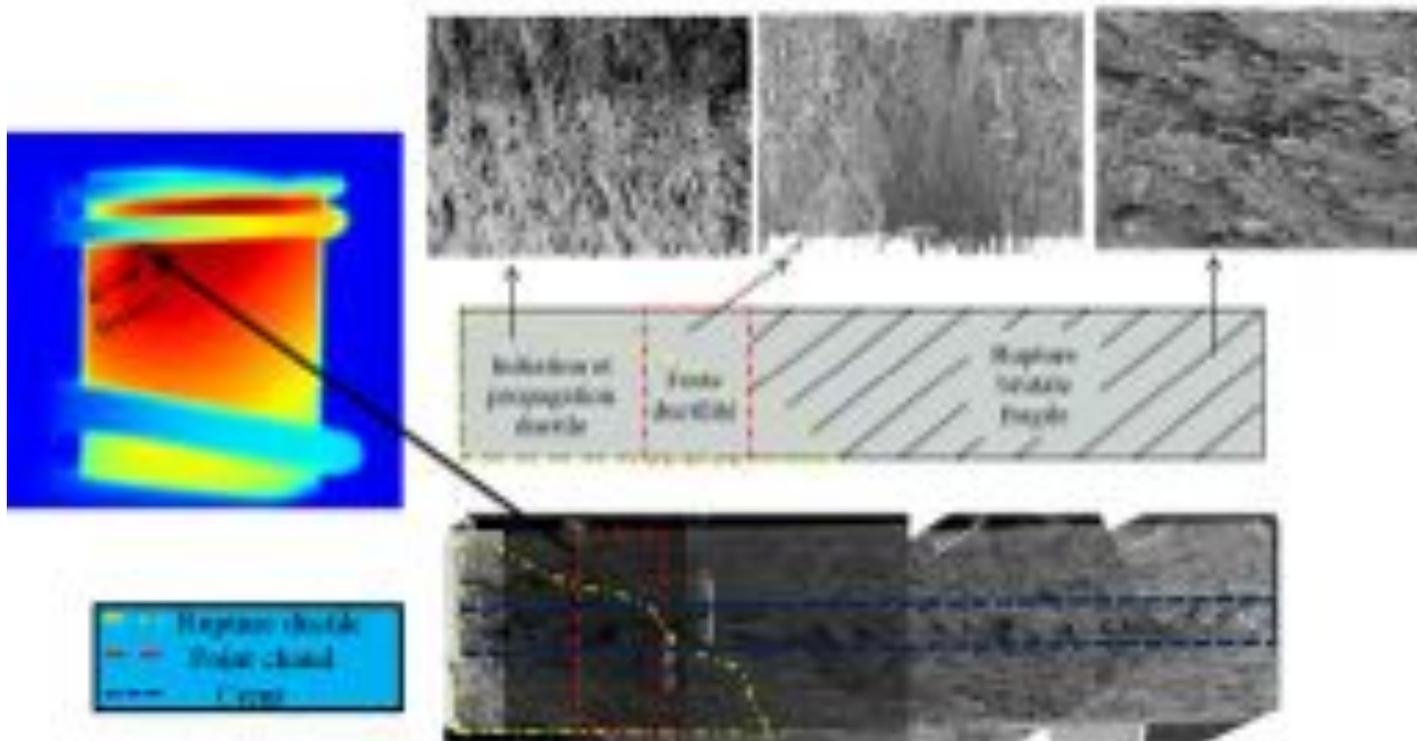
#### 4 RESULTATS

Le protocole est appliqué sur une éprouvette pour laquelle la rupture a lieu après 547 cycles et où on peut repérer l'apparition du point chaud (cf. **figure 5**). Les faciès de rupture sont observés au microscope électronique à balayage (MEB). Trois zones peuvent être identifiées : la première correspond à la zone d'amorçage de la fissure, présence de rupture ductile (forts étirements dans la matrice thermoplastique [6]); la deuxième présente les étirements les plus importants (forte ductilité); la troisième zone correspond à la zone de rupture brutale, rupture fragile (déchaussement des fibres [6])(cf. **figure 6**).

Nous pouvons constater que la zone avec la plus forte ductilité correspond au point chaud.



**Fig. 5** – Point chaud avant et après rupture, durée de vie 547 cycles



**Fig. 6** – Zones des faciès de rupture, durée de vie 547 cycles

## 5 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

En appliquant la démarche montrée, nous avons pu constater que l'emplacement de la rupture ductile est cohérent avec l'emplacement du point chaud. Pour des prochains travaux il faudra améliorer le protocole expérimental de façon qu'on puisse mesurer des points chauds pour des durées de vie plus importantes, un autre intérêt de cette démarche est de pouvoir détecter l'endroit d'amorçage sur des structures complexes, cela pourrait faciliter l'identification des zones plus sensibles vis-à-vis de la fatigue.

## REFERENCES

- [1] Bernasconi A, Davoli P, Armani C. Fatigue strength of a clutch pedal made of reprocessed short glass fibre reinforced polyamide. *Int J Fatigue* 2010;32:100–7.
- [2] Casado J, Carrascal I, Polanco J, Gutiérrez-Solana F. Fatigue failure of short glass fibre reinforced PA 6.6 structural pieces for railway track fasteners. *Eng Failure Anal* 2006;13:182-97.
- [3] Jegou L, Le Saux V, Marco Y, Calloch S, Fast prediction of the Wöhler curve from heat build-up measurements on Short Fiber Reinforced Plastic . *International Journal of Fatigue*, Volume 47, February 2013, Pages 259-267
- [4] Guster C, Pinter G, Mösenbacher A, Eichlseder W. Evaluation of a simulation process for fatigue life calculation of short fibre reinforced plastic components. *Proc Eng* 2011;10:2104-9.
- [5] Sonsino C, Moosbrugger E. Fatigue design of highly loaded short-glass-fibre reinforced polyamide parts in engine compartments. *Int J Fatigue* 2008;30:1279-88.
- [6] L. Jegou. Caractérisation rapide des propriétés en fatigue d'un polymère renforcé par des fibres courtes, pour une application automobile.
- [7] A. Launay. Thermoplastiques renforcés en fibres de verre courtes : comportement cyclique, fatigue et durée de vie.

# OPTIMISATION DE FORMULATIONS DE POLYPROPYLENE RENFORCEES PAR DES FIBRES VEGETALES ET TRANSFORMEES PAR EXTRUSION.

**M. Tanguy**, T. Gaudry, *Cooper Standard Vitré, BP90344-36 rue Pierre et Marie Curie 35503 Vitré Cedex, Téléphone : 02 99 7587 40, Adresse(s) électronique(s) : morgane.tanguy@cooperstandard.com, thierry.gaudry@cooperstandard.com*

A. Bourmaud, C. Baley, *LIMATB, Université de Bretagne Sud, rue de saint Maudé, BP 92 116, 56 321 Lorient Cedex. Téléphone : 02 97 87 45 53, Adresse(s) électronique(s) : alain.bourmaud@univ-ubs.fr, christophe.baley@univ-ubs.fr*

**Mots clés : Composites, extrusion, fibres de bois, fibres de lin, propriétés mécaniques**

## 1. INTRODUCTION

Depuis quelques années, l'industrie automobile cherche de nouveaux matériaux moins impactant pour l'environnement et réduisant la dépendance au pétrole. En effet la législation actuelle pousse les constructeurs à utiliser des matériaux « verts » ; c'est-à-dire recyclés, recyclables ou issus de ressources renouvelables. La directive européenne 2000/53/CE prévoit que d'ici 2015, 95% de la masse d'un véhicule devra être réutilisable ou valorisable. Dans ce contexte, l'utilisation des fibres naturelles comme renfort pour le renforcement de polymère paraît judicieuse. Leurs faibles densités permettent également de diminuer la masse des pièces, par conséquent la consommation de carburant et donc de limiter les émissions de CO<sup>2</sup>. Ajoutons à cela leur origine renouvelable et l'on obtient une ACV favorable à l'introduction de fibre végétales dans des pièces thermoplastiques (Le Duigou, 2011). Dans le cadre de cette étude, les fibres végétales qui ont retenu notre attention sont celles de lin et de bois pour leur propriétés mécaniques ou leur disponibilités sous forme de semi produits faciles à doser lors de la phase d'extrusion.

Les fibres de lin ont un module d'Young variant entre 46 et 72 GPa (Baley, 2002), alors que celui de la fibre de bois est de 30 GPa (Berglund, 2010). Ce module d'Young dépend de l'angle microfibrillaire ou encore du taux de cellulose contenu dans la fibre, de la cristallinité de la cellulose (DP) mais aussi de la structure biochimique des parois (Bourmaud 2013). L'angle formé par les microfibrilles de cellulose par rapport à l'axe principal de la fibre est appelé angle microfibrillaire (AMF). Il est généralement corrélé négativement avec la rigidité des fibres (Salmen 2004).

*Tableau 1 Paramètres géométriques initiales, angle microfibrillaire (AMF) pour les fibres de lin et de bois 1 (Wainwright, 1982), 2 (Bourmaud, 2013), 3 (Salmen, 2004)*

	Ø [µm]	longueur [cm]	ratio L/D	AMF[°]	DP
<b>Lin</b>	11-20 <sup>1</sup>	1-3 <sup>1</sup>	900-1500 <sup>1</sup>	8,3-9,3 <sup>2</sup>	7000-8000 <sup>1</sup>
<b>Bois</b>	20-30 <sup>1</sup>	0,1-0,3 <sup>1</sup>	33-150 <sup>1</sup>	10-40 <sup>3</sup>	10 000 <sup>1</sup>

Le module d'Young plus important de la fibre de lin s'explique par un angle microfibrillaire plus faible et par sa composition chimique. En effet, le bois contient environ 42% de cellulose, 27% d'hémicellulose et 28% de lignine (Berglund, 2010) contre 67% de cellulose, 11% d'hémicellulose et 2% de lignine (Lilholt, 1999) pour le lin. La fibre de lin contient plus de cellulose ce qui lui confère de meilleures propriétés mécaniques.

Les charges minérales comme le talc sont très utilisées dans l'industrie des thermoplastiques. Elles permettent une diminution des coûts de la matière, une augmentation de la rigidité et aussi une lubrification pendant le process d'extrusion d'où le nom de processing aid. C'est le caractère

lamellaire des particules de talc et leur faible cohésion interlamellaire qui permettent la lubrification (Yahani, 2011). Dans ce cadre, de la poudre de coquille d'huitre sera aussi testée.

Dans cette étude des compounds ont été réalisés en mélangeant du polypropylène grade d'extrusion avec des granulés de fibres de bois, des fibres de verre, des fibres de lin, du talc et de la poudre de coquille d'huitre. Les fibres de verre sont utilisées comme référence. Les mélanges ont été réalisés selon un plan d'expérience spécifique nommé le plan de mélange. Les valeurs des caractérisations mécaniques seront ensuite exploitées à l'aide du logiciel de statistique Minitab®.

## 2. MATERIAUX ET METHODES

### 2.1 Matériaux

Pour cette étude, 5 compounds ont été testés. Ces compounds sont composés de polypropylène copo, de 1% d'agent de couplage (anhydride maléique), et de 30% de renforts (fibres de verre, fibres de lin et fibre de bois) et charges (talc, huitre) en masse. Les compounds ont été mélangés à l'aide d'une extrudeuse bi-vis corotative.

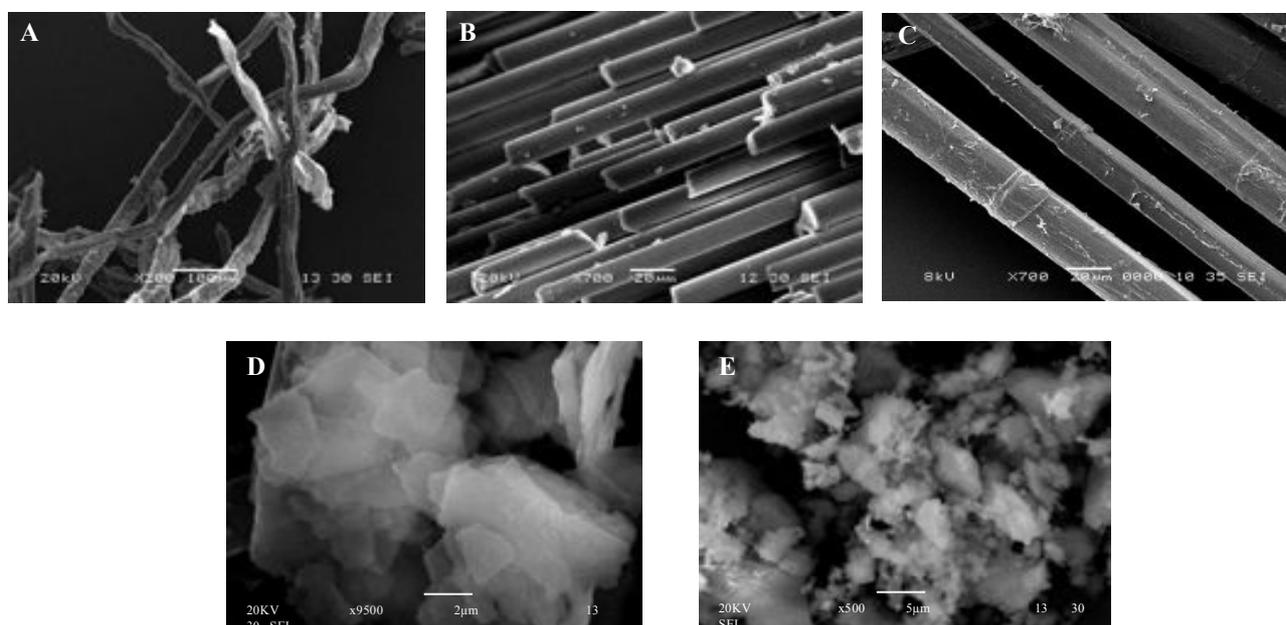


Figure 1, Clichés MEB de fibre de bois (A), de verre (B), de lin (C), de talc (D) et de poudre de coquille d'huitre (E)

### 2.2 Méthodes

Les compounds ont été injectés pour obtenir des éprouvettes haltères normalisées. Ces éprouvettes ont ensuite été testées sur une machine de traction MTS Synergie 1000 équipée d'un capteur de 10 kN avec une vitesse de 1 mm/mn; le suivi des déformations a été réalisé grâce à un extensomètre. Les valeurs de module d'Young, de contrainte maximale et de déformation à la rupture présentées sont les moyennes de 5 essais reproductibles. La résistance au choc a été testé par choc charpy sur des éprouvettes sans entaille et les moyennes calculées sur au moins 10 éprouvettes ayant cassé (absence de rupture pour certaines éprouvettes de PP talc). Les faciès de rupture des éprouvettes après traction ont été observés au microscope à balayage électronique.

L'exploitation des valeurs de module d'Young, contrainte max et d'énergie absorbée lors d'un choc a été faite à l'aide d'un logiciel de statistique appelé Minitab® qui permet l'exploitation des plans d'expériences. Dans cette étude, un plan de mélange, non détaillé ici, a été mis en place afin de s'adapter aux problématiques de formulation.

### 3. RESULTATS ET DISCUSSION

Le tableau 2 regroupe les valeurs d'énergie absorbée lors d'un choc, de modules d'Young, de contraintes maximales et d'allongements à la rupture mesurés sur les éprouvettes injectées de PP talc, PP bois, PP huitre, PP verre, PP lin et PP vierge. Les éprouvettes comportant des fibres de bois présentent des valeurs de choc charpy très faibles alors que celles réalisées avec du talc ou de la poudre d'huitre sont très performantes sur ce point. Les fibres de lin et de verre permettent une augmentation importante du module d'Young (4260 MPa et 5839 MPa respectivement) par rapport au PP vierge (1538MPa), contrairement aux fibres de bois (2449 MPa).

En ce qui concerne la contrainte maximale des composites, seules les fibres de verre et de lin permettent une amélioration par rapport au PP vierge. Les fibres de verre et de lin ont des propriétés mécaniques plus élevées par rapport à celles de bois. Ceci est corrélé avec leurs capacités de renforcement du PP.

L'effet renforçant des fibres est nettement mis en valeur. Lors de la suite de ces travaux, des caractérisations morphologiques permettront de connaître les facteurs de forme des différents renforts (avant et après process) ainsi que leurs distributions, leurs orientations et leurs microstructures. Ces éléments doivent permettre de mieux comprendre les différences de comportement notées ici. La division et la répartition des renforts sera également étudiée. Par ailleurs, lorsque cela sera possible, les propriétés mécaniques des renforts utilisés seront déterminées.

Tableau 2 Propriétés mécaniques moyennes du PP vierge et des compounds PP talc, PP bois, PP huitre, PP verre et PP lin

	Energie au choc [kJ/m2]	Module d'Young [MPa]	Contrainte maximale [MPa]	Allongement à la rupture [%]
PP vierge	-	1538 (±28)	28.1 (±0.3)	-
PP Talc	57,5 (±8,1)	4052 (±35)	25,3 (±1,8)	32,6 (±3,1)
PP Bois	8,6 (±1,2)	2449 (±98)	20,2 (±0,6)	5,0 (±1,2)
PP Huitre	44,8 (±4,1)	3840 (±346)	23,4 (±0,5)	-
PP Verre	34,6 (±2,3)	5840 (±564)	52,6 (±1,0)	5,2 (±1,3)
PP Lin	24,4 (±1,8)	4260 (±201)	34,6 (±0,7)	3,2 (±0,2)

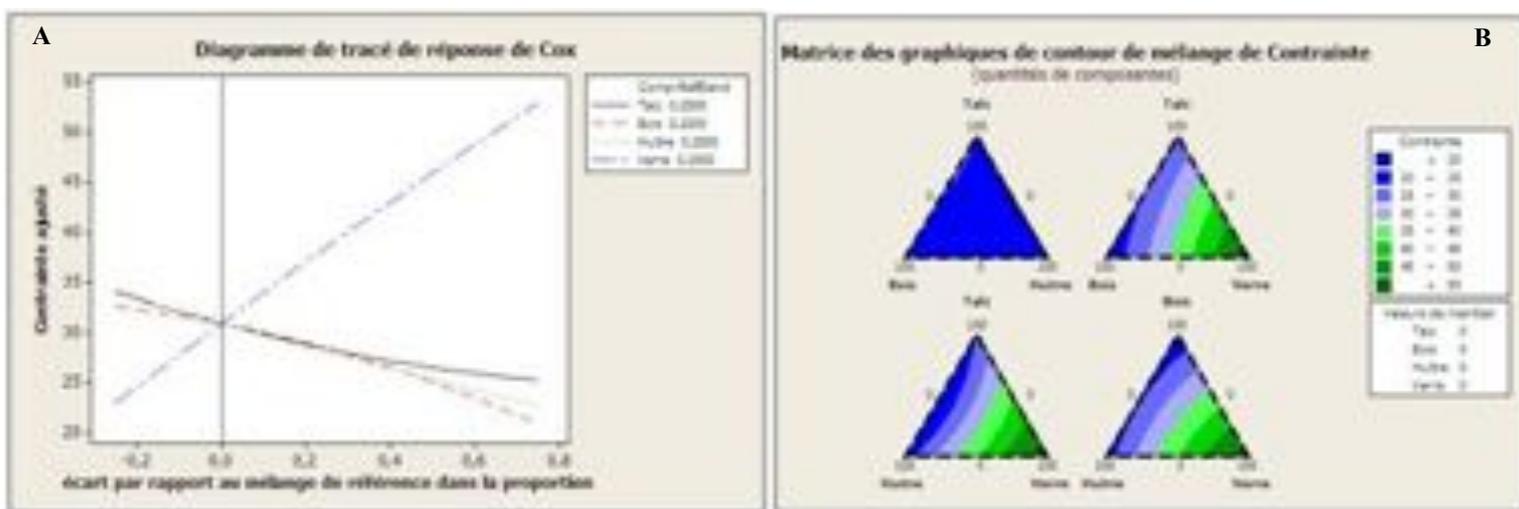


Figure 2, Diagramme de tracé de réponse de Cox pour la contrainte max en traction (A), Matrice des graphiques de contour de mélange pour la réponse en contrainte maximale en traction (B)

Les propriétés des compounds ainsi que celles des mélanges ont été exploitées à l'aide d'un plan de mélange sous Minitab<sup>®</sup>. Les mélanges comportant du lin n'ont pas encore été introduits dans ce plan d'expérience. Le diagramme de tracé de réponse de Cox (Figure 2) montre l'évolution des contraintes maximales en fonction des proportions des composants par rapport à un mélange de référence. L'introduction de fibres de verre permet d'augmenter nettement la résistance. Les particules de talc et de poudre d'huître ainsi que les fibres de bois, ont quant à elles tendance à la diminuer; elles génèrent des concentrations de contraintes conduisant à une rupture prématurée. Les graphiques de contour de mélange (Figure 3) indiquent que, pour obtenir une contrainte supérieure à 35 MPa, les mélanges comportant du verre seraient à privilégier. Cependant l'objectif est d'optimiser les formulations comportant des fibres végétales afin d'obtenir de nouveaux matériaux moins impactant. La prochaine étape de ce travail consistera à incorporer à ce plan d'expérience les fibres de lin afin de juger de la pertinence de leur association avec des charges minérales dans des mélanges multiphasés.

#### 4. CONCLUSION

Cette première étape a permis de comparer les performances mécaniques en traction et au choc de différents composites à matrice polypropylène renforcés par des fibres de bois, de verre et de lin et par des particules de talc et de coquille d'huître. D'une manière générale l'effet renforçant des fibres a été mis en évidence ainsi que les bonnes performances à l'impact du talc et de la poudre d'huître.

Une démarche de plan d'expérience a été entamée, elle permettra d'ajuster les formulations selon les caractéristiques visées et de mettre en évidence les constituants les plus influents. Elle peut aussi être utilisée, dans le cadre d'une démarche environnementale pour optimiser le taux de matériaux biosourcés dans un composite.

Dans la suite de ces travaux, le plan d'expérience sera complété par les mélanges comportant du lin. Une analyse morphologique approfondie sera également menée afin de comprendre l'impact de la géométrie des renforts et de leur répartition sur les performances mécaniques des composites. Des formulations à iso volumes de renforts seront également réalisées pour une meilleure compréhension des mécanismes de renforcement.

#### REFERENCES

- Baley C., "Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. Compos.", *Part Appl. Sci. Manuf.*, 33, (2002), pp. 939–948.
- Berglund L, "Wood biocomposites – extending the property range of paper products", *Mechanics of Paper Products Edited by Kaarlo Niskanen*(2012) pp231-252
- Bourmaud, A., C. Morvan, A. Bouali, et al. "Relationships between micro-fibrillar angle, mechanical properties and biochemical composition of flax fibers." *Industrial Crops and Products*. 44(0) (2013). p. 343-351.
- Le Duigou, A., P. Davies, and C. Baley. "Environmental Impact Analysis of the Production of Flax Fibres to be Used as Composite Material Reinforcement." *Journal of Biobased Materials and Bioenergy*. 5 (2011). p. 1-13.
- Jahani Y. "Comparison of the effect of mica and talc and chemical coupling on the reology, morphology, and mechanical properties of polypropylene composites." *Polymers for Advanced Technologies*. 22(6), (2011),pp942-950
- Lilholt H, Toftegaard H, Thomsen AB, Schmidt AS. "Natural composites based on cellulosic fibres and polypropylene matrix. Their processing and characterization." *Proceedings of ICCM 12*, Paris; July 1999. p. 9.
- Salmén, L. "Micromechanical understanding of the cell-wall structure." *Comptes Rendus Biologies*. 327(9-10) (2004). p. 873-880.
- Wainwright, S. A., Biggs, W. D., Currey, J. D., and Gosline, J. M. "Mechanical Design in Organisms" *Princeton, NJ, USA: Princeton University Press*(1982).

# SIMULATION DE LA MISE EN FORME DE RENFORTS SECS EN FIBRES DE LIN

**C.Tephany**, P.Ouagne, J.Gillibert *Laboratoire PRISME Orléans, 8 rue Léonard de Vinci, 45072 Orléans Cedex. Téléphone : 02 38 49 44 68, [christophe.tephany@etu.univ-orleans.fr](mailto:christophe.tephany@etu.univ-orleans.fr), [pierre.ouagne@univ-orleans.fr](mailto:pierre.ouagne@univ-orleans.fr), [jean.gillibert@univ-orleans.fr](mailto:jean.gillibert@univ-orleans.fr),*

D.Soulat, *Gemtex, ENSAIT Roubaix, 2 Allée Louise et Victor Champier, BP30329, 59056 Roubaix. Téléphone : 03 20 25 89 36, [damien.soulat@ensait.fr](mailto:damien.soulat@ensait.fr),*

**Mots clés : Renforts en lin, Emboutissage, Elements finis, Resin Tranfert Moulding,**

## 1. INTRODUCTION

L'intérêt croissant pour les fibres naturelles, comme alternatives aux fibres synthétiques, est analysé par de nombreux travaux de la littérature mais surtout à l'échelle des fibres (Baley, 2002, Bos, 2006). Lors de l'étape de préformage du procédé *Resin Transfert Moulding* sur des formes complexes les déformations en tensions subies par des renforts de lin peuvent être conséquentes (Ouagne, 2011, 2012), pouvant conduire à des défauts dans la pièce composite finie.

Le lien entre ces déformations lors du procédé et les caractéristiques en tension admissibles par ces renforts nécessite d'être étudié à l'échelle des mèches et des renforts tissés. La finalité de cette étude est de définir un modèle de comportement dans le cadre des renforts de lin afin de développer un outil de simulation du préformage de renforts secs. Ce modèle devra prendre en compte les non-linéarités initiales constatées lors des essais de caractérisation en tension réalisés à l'échelle des renforts pour permettre de prédire les paramètres de fabrication optimaux.

## 2. SIMULATION DE L'EMBOUITISSAGE DES RENFORTS SECS

### 2.1 Contexte et objectifs

La mise en forme des renforts secs est un processus complexe au cours duquel ces renforts subissent des sollicitations diverses. Cette complexité empêche de prédire l'apparition de défauts de façon directe. C'est pourquoi une étude numérique du procédé d'emboutissage des renforts à base de fibres de lin a été amorcée. L'objectif étant de mettre en place un modèle permettant de définir les conditions procédés nécessaires afin de garantir une pièce conforme. Dans l'optique d'une utilisation industrielle future, cette modélisation a été développée sous le code élément fini ABAQUS®. Le procédé implique de gérer les différentes interactions entre le renfort et les différents éléments du banc de mise en œuvre (serre-flan, matrice et poinçon).

### 2.2 Définition du modèle

Ce modèle a été développée dans le cadre de la thèse de Najjar (2013). Il s'appuie sur des caractérisations mécaniques expérimentales en traction et en cisaillement plan. Le comportement mécanique des renforts secs est modélisé dans ce logiciel à l'aide de deux types d'éléments ; des éléments coques et des connecteurs spécialisés. L'association d'éléments finis et de raidisseurs axiaux permet de découpler les différents comportements opérants lors de la mise en œuvre :

- Le comportement en cisaillement plan est modélisé à l'aide d'éléments finis de types coques. Ces éléments permettent de gérer les contacts entre le tissu et les différents outils intervenant dans le procédé.

- Le comportement en tension est modélisé par des connecteurs axiaux qui fonctionnent sur le principe de ressort. Ils permettent de modéliser un comportement linéaire ou non linéaire par l'intermédiaire d'une fonction force/déplacement.

Le principe de la méthode (figure 1) revient à décomposer le renfort en cellules régies par des propriétés d'équivalence, c'est-à-dire qu'on ne modélise pas nécessairement le comportement d'une mèche mais plutôt un comportement équivalent d'une cellule élémentaire ou non définie par la taille du maillage.

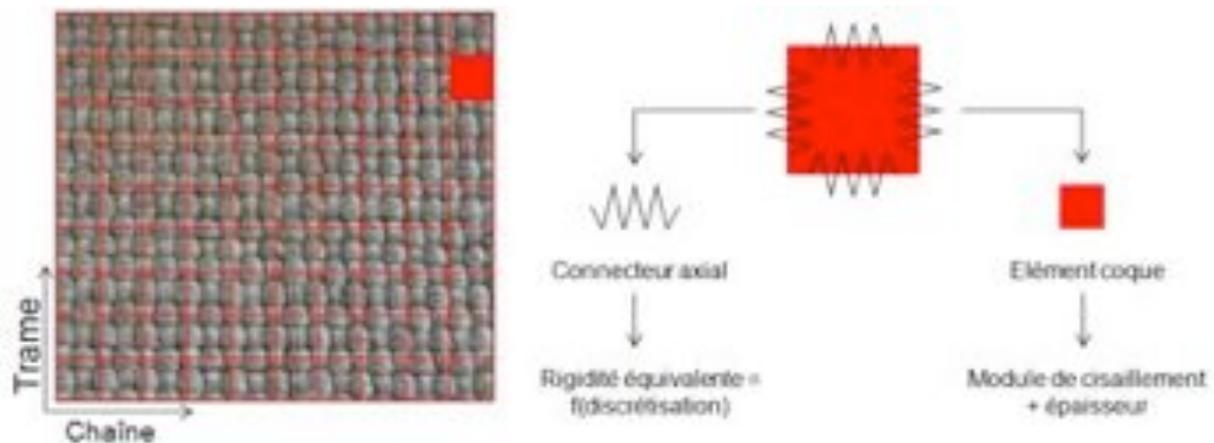


Figure 1. Principe du modèle éléments finis

L'avantage majeur de cette méthode réside dans le fait que sa mise en place ne nécessite l'identification que de 4 paramètres, facilement identifiables dans le cas d'un comportement élastique linéaire, par les essais de caractérisations.

- *Paramètre en tension* : une rigidité  $K$  (cas linéaire) ou une loi force/déplacement (cas non linéaire)
- *Paramètres en cisaillement* : module de cisaillement caractérisé par un module de Young et un coefficient de Poisson, et une épaisseur.

### 3. RESULTATS

#### 3.1 Matériau et protocole expérimental

Pour valider la modélisation, nous avons comparé les résultats issus de la modélisation avec des essais d'emboutissage. Pour cela, nous avons utilisé un taffetas de lin dont les caractéristiques sont :

<b>Nature du renfort</b>	100% lin
<b>Structure du renfort</b>	Taffetas
<b>Structure des mèches</b>	Ruban
<b>Densité linéique [g/m]</b>	Chaîne : $468.2 \pm 34.78$ Trame : $537.7 \pm 44.36$
<b>Masse surfacique [g/m<sup>2</sup>]</b>	373.2
<b>Largeur moyenne [mm]</b>	Chaîne : $2.12 \pm 0.35$ Trame : $2.46 \pm 0.28$

Tableau 1. Paramètres architecturaux du renfort étudié

Les essais expérimentaux ont été menés au GEMTEX de Roubaix sur le tissu décrit précédemment et pour deux orientations de renfort différentes : une orientation  $0^\circ/90^\circ$  et une orientation  $-45^\circ/45^\circ$ . Le poinçon utilisé est un poinçon hémisphérique de faible diamètre ( $\varnothing 50\text{mm}$ ).

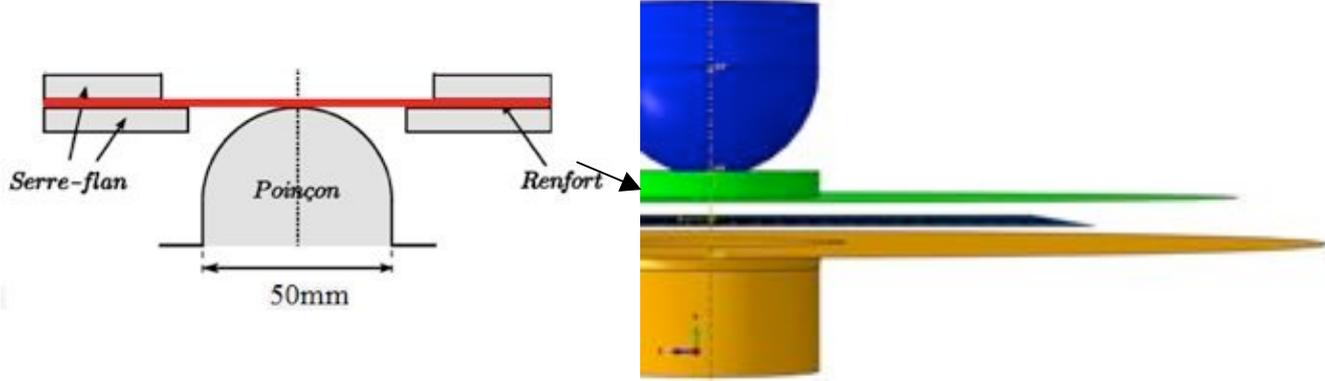


Figure 2. Dimensions du poinçon hémisphérique et de l'outillage associé et sa modélisation.

La mise en place du modèle nécessite également de tenir compte de l'outillage associé à la mise en forme et notamment des propriétés de contact entre les différents éléments (matrice, serre-flan et poinçon).

3.2 Confrontation expérience/simulation

Deux critères sont utilisés pour comparer les résultats expérimentaux et numériques. Le premier concerne le cisaillement du renfort, c'est-à-dire la différence angulaire entre l'état initial ( $90^\circ$ ) et l'angle final fait par le croisement d'une mèche de sens trame et de sens chaîne.

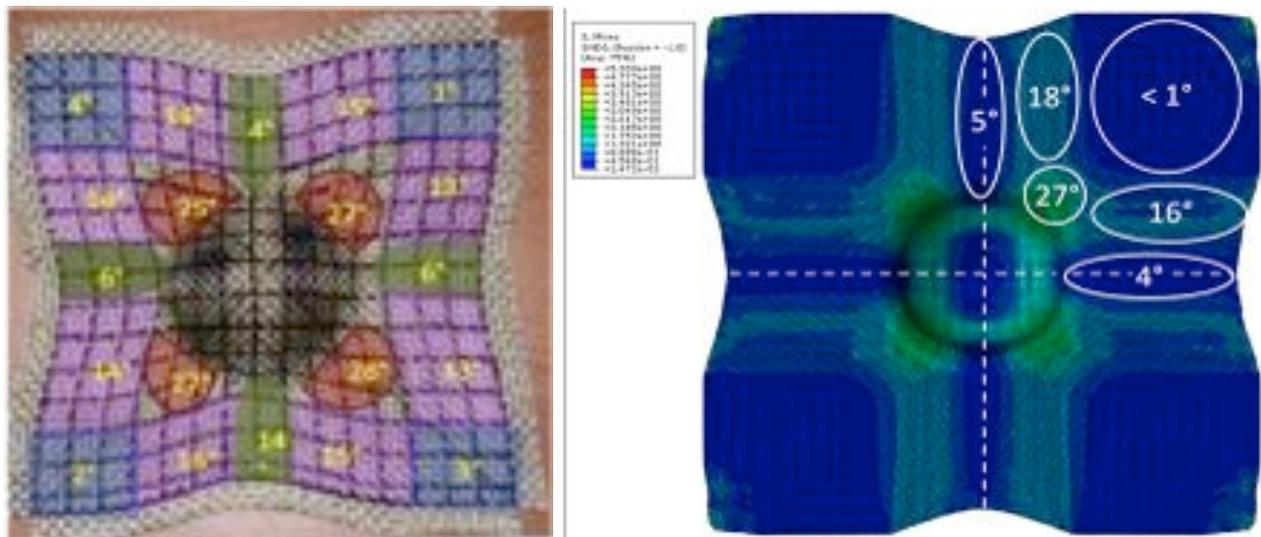


Figure 3. Relevés du cisaillement expérimental (à gauche) et numérique (à droite) pour une orientation  $0^\circ/90^\circ$ .

Les résultats obtenus, *figure 3*, ont montré une bonne approche du modèle numérique sur le comportement en cisaillement, mettant en évidence les zones caractéristiques de ce dernier.

Le deuxième concerne l'avalement du tissu, c'est-à-dire la comparaison entre les dimensions extérieures initiales et finales du renfort. Nos résultats numériques rentre dans l'incertitude de mesure expérimentale et traduit bien l'effet du non équilibre du renfort.

#### 4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Le modèle a donné satisfactions pour la simulation de l'emboutissage des renforts tissés 2D en lin. Ce modèle permet de définir des conditions de mise en forme multiples, tels que la pression serre-flan ou l'orientation du renfort.

La perspective de ce modèle est de l'étendre à des géométries plus complexes, qui ont été expérimentées, d'en éprouver la validité et ainsi un définir un outil prédictif de comportement matériau lors de l'emboutissage RTM.

Il pourrait également servir à une approche inverse d'optimisation visant à l'élaboration de nouveaux matériaux, c'est-à-dire créer des nouveaux renforts, les éprouver numériquement avant de passer à la confection et la mise en forme expérimentale des renforts.

#### REFERENCES

Abaqus : <http://www.ilsb.tuwien.ac.at/v6.11/index.html>

Baley C., "Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase", *Composites: Part A*, **33**, (2002), pp. 939–948.

Bos L.H., "Mechanical properties of short-flax-fibre reinforced compounds", *Composites: Part A*, **37**, (2006), pp. 1591–1604.

Najjar W., Legrand X., Pupin C., Dal Santo P., Boude S., "A Simple Discrete Method for the Simulation of the Preforming of Woven Fabric Reinforcement", *Key Engineering Materials*, **Vol. 504-506**, (2013), pp.213-218.

Ouagne P., Soulat D., "Analysis of defects during the the preforming of a woven flax reinforcement", *Advanced Composites Letters*, (2011), pp. 105 -108.

Ouagne P., Soulat D., "Mechanical characterisation of flax based woven fabrics and in situ measurements of tow tensile strain during the shape forming", *Journal of Composite Materials*, (2012).

Abaqus : <http://www.ilsb.tuwien.ac.at/v6.11/index.html>

# OBSERVATION 3D ET MODÉLISATION DE L'HYGROEXPANSION DE FIBRES LIGNO-CELLULOSIQUES

M. Toungara<sup>1</sup>, P. Latil<sup>1</sup>, P.J.J. Dumont<sup>1</sup>, S. Rolland du Roscoat<sup>2</sup>, L. Orgéas<sup>2</sup>, T. Joffre<sup>3</sup>, R. Passas<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire LGP2, CNRS / Univ. Grenoble Alpes, France

<sup>2</sup> Laboratoire 3SR, CNRS / Univ. Grenoble Alpes, France

<sup>3</sup> Ångström laboratoriet, Univ. Uppsala, Suède

mamadou.toungara@lgp2.grenoble-inp.fr, pierre.dumont@grenoble-inp.fr

**Mots clés : Fibres ligno-cellulosiques, Microtomographie, Hygroexpansion, Micromécanique, Modélisation**

## 1 INTRODUCTION

Utilisées comme matière première pour la fabrication de papiers, cartons et, de plus en plus, comme renforts dans les matériaux composites biosourcés, les fibres ligno-cellulosiques issues du bois ou des plantes sont des matériaux renouvelables, biodégradables et recyclables. Dans leur état naturel, elles sont généralement constituées de plusieurs couches concentriques et d'un lumen, notamment d'une couche primaire (P) et de trois couches secondaires (S1, S2 et S3). Chacune de ces couches est constituée de macromolécules de cellulose, elles-mêmes agencées sous la forme d'agrégats parallèles de différentes tailles : typiquement des microfibrilles de cellulose de 3 à 4 nm de diamètre formant elles-mêmes des agrégats de 10 à 40 nm de diamètre, imprégnés par une matrice d'hémicelluloses et de lignines (Fahlén et Salmén, 2003). L'orientation des microfibrilles, mesurée par l'angle formé entre leur direction principale et l'axe de la fibre, déterminent les propriétés mécaniques des différentes couches de la paroi des fibres (Page et al., 1972). Malgré les avantages écologiques et économiques résidant dans l'utilisation de ces fibres, en particulier pour les matériaux composites, ces dernières présentent quelques inconvénients tels que leur sensibilité aux conditions environnementales. Les variations d'Humidité Relative (HR) sont ainsi à l'origine de variations dimensionnelles et de variations d'orientation des angles des microfibrilles. Une augmentation (resp. une diminution) de l'humidité relative conduit à la dilatation (resp. à un retrait) des fibres. Ces variations dimensionnelles à l'échelle des fibres se traduisent par des phénomènes de déformation ou de fissuration à l'échelle des matériaux qu'elles forment ou qu'elles renforcent : par exemple le tuilage des papiers et des cartons ou la fissuration de l'interface fibre-matrice dans les composites biosourcés (Dhakal et al., 2007).

Pour mieux contrôler le comportement des matériaux constitués ou renforcés par des fibres ligno-cellulosiques, il est important de mieux comprendre le comportement mécanique et hygroélastique de ces dernières. À cet effet, de nombreuses études expérimentales ont été réalisées (Page et al., 1972; Tchepel et al., 2006; Olsson et al., 2007; Sedighi-Gilani et Navi, 2007; Yu et al., 2011; Eder et al., 2013). Ces travaux ont notamment permis d'étudier l'influence de l'angle d'orientation des microfibrilles de cellulose sur les propriétés élastiques des fibres. Cependant, très peu de données expérimentales existent sur leurs propriétés hygroélastiques. Parallèlement, des analyses numériques ont été proposées sur des fibres modèles ou reconstruites à partir d'images des sections des fibres obtenues à l'aide de microtomes. Dans ces études, la paroi des fibres est considérée comme un matériau composite stratifié ou non (Neagu et al., 2006; Borodulina, 2013; Joffre et al., 2013). Lorsque la stratification de la paroi n'est pas prise en compte, la modélisation est vue comme représentant le comportement de la couche S2 qui constitue entre 80 et 90% de l'épaisseur de la paroi et, de ce fait, est supposée en dominer le comportement mécanique. Ces analyses numériques ont permis d'étudier l'influence de l'humidité relative sur le comportement mécanique de la fibre, mais elles sont plus souvent basées sur des propriétés hygroélastiques issues de méthodes d'homogénéisation (Persson, 2000).

Dans cette étude préliminaire, des fibres de bois et de papier ont été exposées à un cycle d'humidité relative et leur évolution dimensionnelle a été observée en 3D au cours d'expériences de microtomographie à rayons X. L'analyse des images reconstruites a permis de mesurer différents paramètres cinématiques décrivant les déformations induites par les variations d'humidité relative. Parallèlement, un modèle numérique des fibres est en cours de développement : celui-ci rend compte pour l'instant du couplage entre la microstructure de la paroi des fibres et leur comportement mécanique.

## 2 MATÉRIELS ET MÉTHODES

### 2.1 Observation *in situ* de l'hygroexpansion des fibres par microtomographie à rayons X

Deux types de fibres ont été soumises à un cycle d'humidité et imagées par microtomographie à rayons X : une fibre d'épicéa jamais séchée et une fibre de pâte à papier blanchie de pin maritime. Au cours de ces expériences, ces fibres, d'une longueur de l'ordre de 2 mm chacune, sont collées à leurs deux extrémités sur un support en papier fin. Lui-même est pris dans les mors d'une micro-presse montée sur la platine de rotation du microtomographe à haute résolution de la ligne ID19 de «l'European Synchrotron Radiation Facility» (ESRF) à Grenoble tandis qu'un générateur d'humidité contrôle l'humidité relative de l'air environnant les fibres. À partir de l'humidité relative initiale ( $\approx 50\%$ ), les valeurs suivantes d'humidité relative sont atteintes : 80%, 20% et 50%. Pour chaque valeur d'humidité relative, après une période de stabilisation d'environ 10 min, 1500 radiographies des fibres sont réalisées sur  $180^\circ$  au moyen d'un faisceau de rayons X parallèles, cohérents et monochromatiques. Les rayons X transmis sont ensuite convertis par un scintillateur en lumière visible qui est enregistrée par une caméra numérique ( $2048 \times 2048$  pixels). Le segment des fibres, scanné à une résolution de  $0.3 \times 0.3 \times 0.3 \mu\text{m}^3/\text{voxel}$ , a une longueur de 0.6 mm environ. La technique de reconstruction en 3D des images est basée sur une méthode utilisant le contraste de phase – méthode dite Paganin – qui facilite grandement leur binarisation.

### 2.2 Descripteurs microstructuraux

L'hygroexpansion des fibres est étudiée à partir de leurs images 3D. Pour chaque humidité relative, la ligne moyenne des fibres et des sections droites régulièrement espacées le long de cette ligne sont identifiées. À chaque section sont associées (i) deux directions principales (Fig. 1.a),  $\vec{d}_1$  et  $\vec{d}_2$ , qui permettent de déterminer leur orientation  $\theta$  par rapport à une section de référence et (ii) une troisième direction orthogonale au plan défini par  $\vec{d}_1$  et  $\vec{d}_2$ ,  $\vec{d}_3 = \vec{d}_1 \times \vec{d}_2$ . L'évolution de ces différentes directions le long de l'abscisse curviligne de la ligne moyenne  $s$  permet de définir les courbures locales des fibres :

$$\frac{\partial \vec{d}_i}{\partial s} = \vec{\omega} \times \vec{d}_i, \quad i \in \{1,2,3\} \quad (1)$$

où  $\vec{\omega} = \omega_1 \vec{d}_1 + \omega_2 \vec{d}_2 + \omega_3 \vec{d}_3$ . Les composantes  $\omega_1$  et  $\omega_2$  définissent, respectivement, la courbure par rapport aux directions  $\vec{d}_1$  et  $\vec{d}_2$ . La courbure principale de la fibre est définie par  $\kappa = \sqrt{\omega_1^2 + \omega_2^2}$ . La composante  $\omega_3$  définit le taux de rotation par rapport à la direction  $\vec{d}_3$  et correspond au taux de variation de l'angle de torsion  $\theta$  avec  $s$ . Les variations de ces paramètres avec l'humidité sont caractéristiques des déformations induites par l'hygroexpansion des fibres.

### 2.3 Modèle numérique

Un modèle numérique se limitant pour l'instant aux aspects mécaniques du comportement des fibres est proposé. Les fibres sont vues comme des tubes cylindriques monocouches, représentant la couche S2 de la paroi, avec un rayon intérieur de  $12 \mu\text{m}$ , un rayon extérieur de  $13.5 \mu\text{m}$  et une longueur de  $200 \mu\text{m}$ . La paroi est considérée comme un matériau ayant un comportement élastique linéaire et anisotrope dont les propriétés mécaniques sont tirées de la littérature (Borodulina, 2013). La direction principale d'anisotropie est celle des microfibrilles de cellulose. Un maillage structuré et des éléments lagrangiens quadratiques ont été adoptés. Deux types de sollicitations ont été étudiés : un essai de traction uniaxiale et un essai de compression radiale. Pour la traction, les fibres sont encastées à une de leurs extrémités, l'autre extrémité étant soumise à un déplacement axial non nul – correspondant à une déformation axiale de 10% – et des déplacements transversaux nuls. Pour la compression, un point des fibres est encasté et une déformation de 10% est imposée sur deux lignes parallèles à leur axe et diamétralement opposées. Cette étude permet de montrer l'influence de l'angle d'orientation des microfibrilles sur le comportement mécanique des fibres. Les simulations numériques sont réalisées à l'aide d'un code de calcul par éléments finis, Comsol Multiphysics<sup>©</sup>.

## 3 RÉSULTATS

### 3.1 Résultats expérimentaux

Les résultats obtenus sont illustrés dans ce résumé pour la fibre d'épicéa. Son hygroexpansion est analysée pour les variations suivantes de l'humidité relative : 47%, 80%, 20% et 50%. Ces variations

induisent des phénomènes de déformation complexes et couplés au sein de la fibre : dilatation et retrait de l'aire des sections, torsion et flexion de la fibre. Par exemple, une augmentation, resp. une diminution, de l'humidité relative de 47% à 80%, resp. de 80% à 20%, entraîne, en moyenne, une dilatation, resp. un retrait, de 1%, resp. de -10%, de l'aire des sections. Ce résultat met en évidence la réponse non-linéaire du comportement hygromécanique de la fibre. De telles variations s'accompagnent d'une torsion de la fibre qui, initialement vrillée (l'angle  $\theta$  variant de près de  $250^\circ$  entre ses sections extrêmes : voir Fig. 1.b et 1.c), tend à se redresser avec l'augmentation de l'humidité relative. La variation de l'angle  $\theta$  n'est que de  $210^\circ$  (resp. atteint  $290^\circ$ ) quand l'humidité relative passe de 47% à 80% (resp. de 80% à 20%). À partir de ces différents résultats sur la torsion, il devient possible d'estimer un ensemble de coefficients d'hygroexpansion traduisant l'anisotropie de ce phénomène pour les fibres. Par exemple, lorsque l'humidité relative passe de 20% à 80%, le coefficient d'hygroexpansion en rotation est de l'ordre de  $-0.038 \text{ rad.mm}^{-1}.\%HR^{-1}$ . Ces mesures ont par ailleurs permis de montrer que la variation d'humidité relative ont peu d'influence sur l'évolution de la courbure  $\kappa$  de la fibre, celle-ci variant le long de la fibre entre  $0.5 \text{ mm}^{-1}$  et  $2.5 \text{ mm}^{-1}$  quelle que soit l'humidité relative.

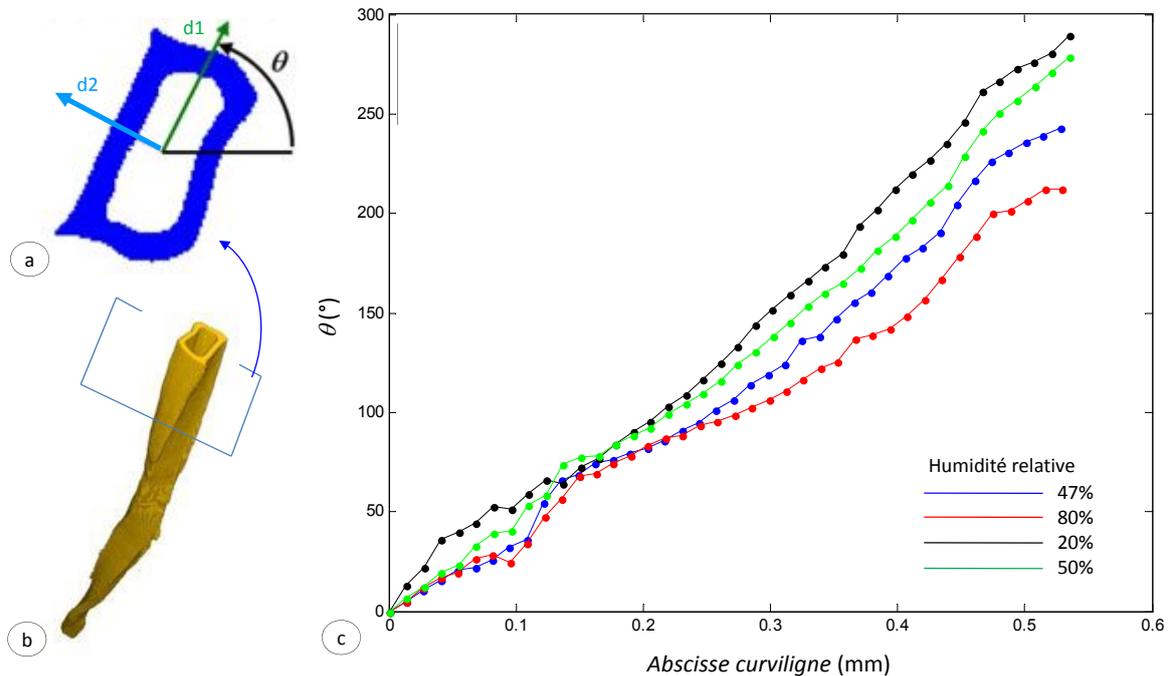


FIG. 1 – Hygroexpansion d'une fibre d'épicéa jamais séchée : (a) section de la fibre et définition des directions principales  $\vec{d}_1$  et  $\vec{d}_2$ , (b) vue en 3D de la fibre montrant son vrillage, (c) vrillage de la fibre en fonction de l'humidité relative le long l'abscisse curviligne  $s$ .

### 3.2 Résultats numériques

Les figures 2.a et 2.b montrent l'évolution de la contrainte axiale maximale  $\sigma_z$  et de la contrainte orthoradiale maximale  $\sigma_\theta$  en fonction de l'angle des microfibrilles (MFA), en traction uniaxiale et en compression radiale, respectivement. Comme on pouvait s'y attendre, l'augmentation de l'angle des microfibrilles fait diminuer  $\sigma_z$  et augmenter  $\sigma_\theta$  (en valeur absolue). Ces évolutions ne sont pas linéaires. Quand l'angle passe de  $10^\circ$  à  $30^\circ$ , la contrainte maximale diminue (resp. augmente) de 39% (resp. de 48%) pour la traction (resp. la compression). En revanche, à partir d'un angle de  $70^\circ$ , la diminution (resp. l'augmentation) de la contrainte maximale n'est que de 26% (resp. de 16%) pour la traction (resp. la compression). La plage de variation des angles de microfibrilles comprise entre  $10^\circ$  et  $30^\circ$  correspond aux valeurs typiques observées pour des fibres de bois de printemps (Bergander et al., 2002). Pour la fibre d'épicéa, cet angle a par exemple été estimée approximativement à  $15^\circ$  par microscopie optique en lumière polarisée. Ces observations montrent que pour une fibre donnée, les angles des microfibrilles et leur évolution en cours de sollicitation doivent être estimés avec précision afin d'aboutir à des prédictions des contraintes précises. Le modèle est en cours de développement afin de rendre compte du comportement hygromécanique des fibres et d'utiliser des géométries 3D directement issues des images de microtomographie pour reproduire les expériences présentées précédemment.

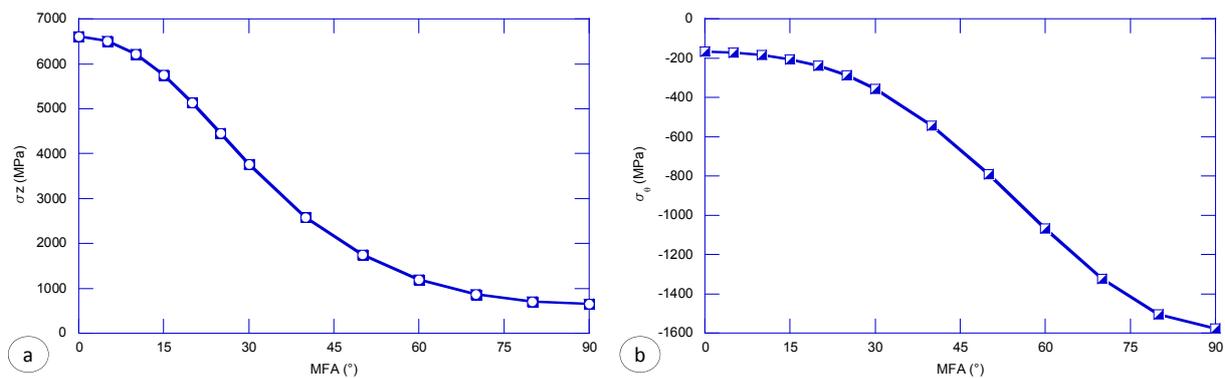


FIG. 2 – Étude de l'influence de l'angle d'orientation des microfibrilles de cellulose (MFA) sur le comportement mécanique de la fibre (a) en traction uniaxiale et (b) en compression radiale.

#### 4 CONCLUSION

L'hygroexpansion de fibres ligno-cellulosiques a été observée *in situ* en utilisant la microtomographie à rayons X. Cette technique permet une observation extrêmement riche des déformations liées à ce phénomène. Les résultats montrent en particulier une forte influence des variations d'humidité relative sur la torsion des fibres qui ont tendance à se redresser lorsque l'humidité relative augmente. Parallèlement, un modèle numérique de fibres est en cours de construction. Pour l'instant, celui-ci rend compte de l'influence des angles des microfibrilles sur la réponse mécanique des fibres, ce qui a été illustré ici pour des sollicitations de traction uniaxiale et compression radiale. Il incorporera à terme le comportement hygroexpansif des fibres. En utilisant des géométries 3D des fibres obtenues à l'aide de la microtomographie, ce modèle permettra d'estimer par méthode inverse les paramètres gouvernant leur hygroexpansion.

#### RÉFÉRENCES

- Bergander A., Brändström J., Daniel G., "Fibril angle variability in earlywood of Norway spruce using soft rot cavities and polarization confocal microscopy", *J. Wood. Sci.*, **48**, (2002), pp. 255–263.
- Borodulina S., "Micromechanical behavior of fiber networks", Master's thesis, KTH School of Engineering Sciences, (2013).
- Dhakal H., Zhang Z., Richardson M., "Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites", *Compos. Sci. Technol.*, **67**, 7-8, (2007), pp. 1674–1683.
- Eder M., Arnould O., Dunlop J. W. C., Hornatowska J., Salmén L., "Experimental micromechanical characterisation of wood cell walls", *Wood Sci. Technol.*, **47**, 1, (2013) pp.163–182.
- Fahlén J., Salmén L., "Cross-sectional structure of the secondary wall of wood fibers as affected by processing", *J. Mater. Sci.*, **38**, (2003), pp. 119–126.
- Joffre T., Neagu R. C., Bardage S. L., Gamstedt E. K., "Modelling of the hygroelastic behaviour of normal and compression wood tracheids", *J. Struct. Biol.*, **185**, 1, (2014), pp. 89–98.
- Neagu C. R., Gamstedt K. E., Bardage S. L., Lindström M. "Ultrastructural features affecting mechanical properties of wood fibres", *Wood Mater. Sci. Eng.*, **1**, 3-4, (2006), pp. 146–170.
- Olsson A. M., Salmén L., Eder M., Burgert I., "Mechano-sorptive creep in wood fibres", *Wood Sci. Technol.*, **41**, 1, (2007), pp. 59–67.
- Page D. H., El-Hosseiny F., Winkler K., Bain R., "The mechanical properties of single wood-pulp fiber. Part I: A new approach", *Pulp Paper Mag. Can.*, **73**, (1972), pp. 72–77.
- Persson K., "Micromechanical Modelling of Wood and Fibre Properties", PhD thesis, Lund University, (2000).
- Sedighi-Gilani M., Navi P., "Experimental observations and micromechanical modeling of successive-damaging phenomenon in wood cells' tensile behavior", *Wood Sci. Technol.*, **41**, 1, (2007), pp. 69–85.
- Tchepel M., Provan J. W., Nishida A. et Biggs, C., "A procedure for measuring the flexibility of single wood-fibres", *Mech. Compos. Mater.*, **42**, (2006), pp. 115–128.
- Yu Y., Jiang Z. Fei, B., Wang G., Wang H., "An improved microtensile technique for mechanical characterization of short plant fibers: a case study on bamboo fibers", *J. Mater. Sci.*, **46**, 3, (2011), pp. 739–746.

# MODELISATION MICROMECHANIQUE DU COMPORTEMENT VISCOELASTIQUE DES COMPOSITES BOIS: APPROCHE INCREMENTALE VS SIMULATIONS EN CHAMPS COMPLETS.

**Benjamin Tressou**, Carole Nadot-Martin, *Département Physique et Mécanique des Matériaux, Institut P', CNRS - ENSMA-Université de Poitiers-UPR 3346, 1, Avenue Clément Ader, BP 40109, F86961 Futuroscope - Chasseneuil Cedex, France. Téléphone : 0(+33)5 49 49 83 66, Adresses électroniques: benjamin.tressou@ensma.fr, carole.nadot@ensma.fr.*

Sardar Malekmohammadi, Reza Vaziri, *Composites Group, Departments of Civil Engineering and Materials Engineering, The University of British Columbia, Vancouver, BC, V6T 1Z4, Canada. Adresses électroniques : sardar@composites.ubc.ca, reza.vaziri@ubc.ca.*

**Mots-clés: composite bois, viscoélasticité, homogénéisation, orthotropie**

## 1. INTRODUCTION

La demande en matériaux biosourcés est en plein essor à travers le monde. Aussi bien par intérêts écologiques qu'économiques, ils peuvent représenter à terme une solution alternative aux matériaux conventionnels dans certains secteurs d'activités. En particulier, les matériaux composites bois ont une place non négligeable dans le domaine de la construction au Canada.

Le développement d'outils prédictifs devient alors primordial pour une bonne compréhension du comportement effectif de ces nouveaux matériaux composites en fonction de leur microstructure. Plusieurs méthodes existent pour répondre à cette problématique. Grâce à l'amélioration des moyens numériques, la simulation en champs complets, par éléments finis par exemple, constitue une solution de référence mais complexe de mise en œuvre. D'autres méthodes « analytiques » en champs moyens sont intéressantes de ce point de vue. En effet, elles permettent d'avoir une bonne approximation des propriétés effectives, tout en réduisant les temps de calcul. Bien entendu, en l'absence de résultats expérimentaux, la solution en champs complets demeure la référence.

Les approches analytiques prennent un peu plus leur sens lors de la prise en compte des phénomènes viscoélastiques. Le gain en temps de calcul s'accumule alors avec le nombre d'itérations temporelles. La construction de ces approches passe d'abord par des modèles simples de viscoélasticité linéaire. Des études ont été faites en utilisant le principe de correspondance et les transformées de Laplace (Hashin, 1970a, 1970b). D'autres méthodes, plus récentes, dites incrémentales, travaillent dans l'espace temps réel, ce qui évite le passage dans l'espace de Laplace, diminuant ainsi la complexité quand le comportement des phases devient non linéaire. L'une d'elle, développée par Lahellec et Suquet, est potentiellement utilisable avec les différents schémas d'homogénéisation existants (Lahellec et Suquet, 2007a, 2007b, 2007c, 2013).

En particulier pour notre étude, celui de Malekmohammadi *et al.* (2013) est utilisé. Ce schéma est adapté à des composites biphasés à forts taux volumiques de fibres parallélépipédiques (supérieur à 90%).

Dans une première partie, le matériau support de l'étude sera présenté. La deuxième partie sera consacrée aux méthodes incrémentale et numérique utilisées pour le calcul des propriétés viscoélastiques effectives. Le troisième paragraphe décrit le schéma d'homogénéisation linéaire développé par Malekmohammadi *et al.* (2013) pour les composites étudiés. Enfin, les

résultats obtenus par l'approche incrémentale combinée à ce schéma sont comparés aux résultats en champs complets.

## 2. BOIS DE COPEAUX PARALLELES (BCP)

Ce papier porte sur un composite bois spécifique très répandu dans le domaine de la construction au Canada, le BCP (ou Bois de Copeaux Parallèles). C'est un matériau de charpente à très forte tenue mécanique. Il est fabriqué à partir d'espèces d'arbres dont les propriétés sont sensiblement identiques afin d'apporter une tenue mécanique homogène au composite. Les copeaux sont collés ensemble sous pression à l'aide d'une résine phénol-formaldéhyde, pour un taux volumique de fibres de 92.7%.

Pour une approche graduelle des difficultés, les simulations en champs complets et le schéma d'homogénéisation linéaire développé par Malekmohammadi *et al.* (2013) reposent sur une idéalisation de la mésostructure réelle. Elle est considérée périodique avec une cellule de base simple définie sur la Figure 1.

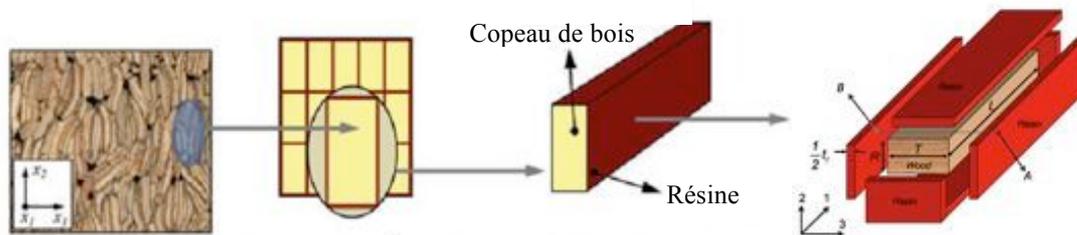


Figure 1: Idéalisation de la cellule de base du bois de copeaux parallèles

Les dimensions du copeaux sont en longueur  $L = 600$  mm, en épaisseur  $R = 5$  mm, et de largeur  $T = 13$  mm (Arwade *et al.*, 2009) et l'épaisseur de la résine vaut  $t_r = 0.28$  mm (Malekmohammadi *et al.*, 2013), ce qui donne un taux volumique de fibres de 92.7%.

## 3. METHODES

### 3.1. Incrémentale

La méthode incrémentale de Lahellec et Suquet (2007a, 2007b, 2007c, 2013) considère chaque constituant d'un matériau à N-phases dans le cadre de la Thermodynamique des Processus Irréversibles, comme un Matériau Standard Généralisé décrit à l'aide de deux potentiels: l'énergie libre et le potentiel de dissipation. Il en résulte alors les relations constitutives du constituant qui relient les contraintes et les déformations et qui définissent les forces motrices des phénomènes dissipatifs. Les équations du problème local sont alors à résoudre en tout point et à tout temps. En combinant les deux potentiels pour n'en former plus qu'un, le potentiel incrémental, et en utilisant la méthode variationnelle de Ponte Castaneda (1992), l'estimation du problème viscoélastique initial se résume à la résolution d'un problème élastique à contrainte libre de déformation. Ce problème élastique est alors résolu analytiquement grâce à un schéma d'homogénéisation linéaire. L'approche incrémentale précédente est ici associée au schéma d'homogénéisation spécifiquement conçu pour la mésostructure présentée au paragraphe 2. La programmation du code a été réalisée à l'aide de Python®.

### 3.2. Numérique

Les simulations en champs complets ont été réalisées à l'aide du logiciel ABAQUS®. La périodicité de la cellule de base conduit à l'utilisation de conditions limites périodiques. Afin

d'obtenir les propriétés effectives, six chargements élémentaires sont réalisés pour reconstituer la matrice de rigidité pour chaque incrément de temps.

#### 4. SCHEMA D'HOMOGENEISATION LINEAIRE

Le composite bois étant à fort taux de fibres à géométrie parallélépipédique, les modèles standards d'homogénéisation (e.g. Hashin-Strickman, Mori-Tanaka) ne sont pas adaptés. De nouvelles équations spécifiquement adaptées (mais aussi limitées) à la mesostructure périodique idéalisée présentée Figure 1 ont été proposées par Malekmohammadi *et al.* (2013). Elles fournissent les neuf constantes ingénieurs caractéristiques d'un matériau orthotrope. En guise d'exemple, le module de cisaillement homogénéisé  $G_{12h}$  de la cellule dans le plan longueur-épaisseur (1-2) (cf. Figure 1) est donné en fonction des caractéristiques géométriques L, R, T et  $t_r$  par:

$$G_{12h} = G_r * \frac{G_{12f} * (1 + \frac{t_r}{L} + \frac{t_r}{R}) + G_r * \frac{t_r}{T}}{G_{12f} * (\frac{t_r}{L} + \frac{t_r}{R}) + G_r * (1 + \frac{t_r}{T})} \quad (1)$$

avec  $G_r$ ,  $G_{12f}$  les modules de cisaillement respectifs de la résine et de la fibre.

#### 5. RESULTATS ET COMPARAISON

Les estimations obtenues par la méthode incrémentale couplée au schéma d'homogénéisation ont été confrontées aux calculs en champs complets. Seules les évolutions temporelles des modules de cisaillement homogénéisés sont présentées ci-dessous.

Les copeaux de bois sont considérés élastiques orthotropes avec des modules de cisaillement de  $G_{12f} = 0.991$  GPa,  $G_{13f} = 0.909$  GPa et  $G_{23f} = 0.162$  GPa. La résine, quant à elle, est prise viscoélastique linéaire isotrope (série de Prony), avec pour module instantané  $G_r = 2.92$  GPa (Malekmohammadi *et al.*, 2013). Par simplicité pour cette première étude, un seul temps de relaxation de 1.6s, de coefficient de 0,856, est considéré.

Après avoir regardé la convergence en terme de pas de temps ou de maillage, les courbes suivantes sont obtenues:

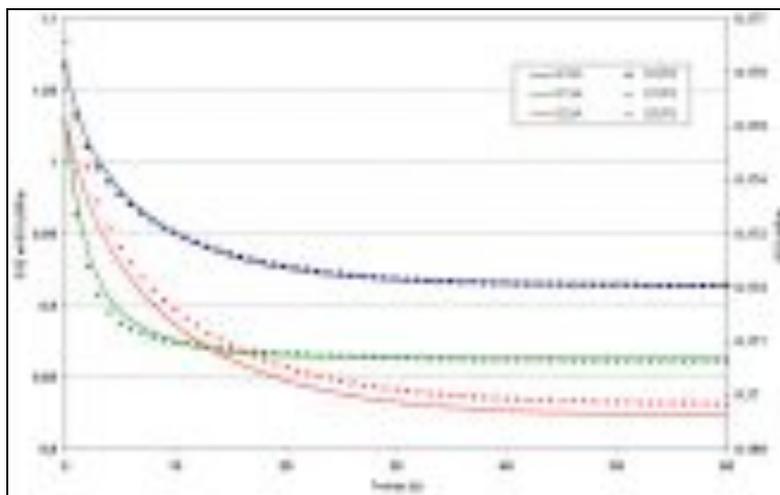


Figure 2: Comparaison des modules de cisaillement entre les deux approches

On observe très clairement, sur la Figure 2, que l'approche incrémentale (en lignes continues) fournit la même évolution au cours du temps que la simulation en champs complets (en

symboles). Par ailleurs, pour cette mésostructure, on a pu montrer que le schéma d'homogénéisation de Malekmohammadi *et al.* (2013) donne des erreurs pour les modules instantanés homogénéisés de l'ordre de 0.2% pour  $G_{12h}$  et  $G_{13h}$  et de 0.9% pour  $G_{23h}$ . Pour  $G_{12h}$  et  $G_{13h}$ , les écarts relatifs sont maximums dans la partie transitoire de l'évolution, montant à 0,8%, pour ensuite se réduire et atteindre moins de 0.1% dans la partie asymptotique. Pour  $G_{23h}$ , l'erreur relative diminue dès le premier pas de temps jusqu'à moins de 0.2%.

Pour les modules de cisaillement, les estimations obtenues grâce à la méthode incrémentale associée au schéma d'homogénéisation sont en adéquation avec les simulations en champs complets.

## 6. CONCLUSION

La méthode incrémentale, due à Lahellec et Suquet (2007a, 2007b, 2007c, 2013), associée au schéma d'homogénéisation de Malekmohammadi *et al.* (2013) prend en compte de manière satisfaisante l'évolution au cours du temps des propriétés homogénéisées de la cellule de base (cf. Figure 1) en cisaillement. Les estimations obtenues pour ces modules viscoélastiques homogénéisés de cisaillement sont en effet en accord avec les calculs en champs complets qui servent ici de solution de référence.

Comme déjà montré par Lahellec et Suquet (2007a, 2007b, 2007c, 2013), cette méthode incrémentale est associable à d'autres schémas d'homogénéisation, c'est-à-dire utilisable pour différentes microstructures, et peut par ailleurs prendre en compte la non linéarité des phases viscoélastiques, ce qui ouvre un champ d'investigation assez large en ce qui concerne la viscoélasticité.

## REFERENCES

- Arwade S.R., Clouston PL et Winans R. "Measurement and stochastic computational modeling of the elastic properties of parallel strand lumber", *J. Eng. Mech-ASCE*, **135**, (2009), pp. 897–905.
- Hashin Z., "Complex moduli of viscoelastic composites - I. General theory and application to particulate composites", *Int. J. Solids Structures*, **Vol. 6**, (1970a), pp. 539-552.
- Hashin Z., "Complex moduli of viscoelastic composites - II. Fiber reinforced materials", *Int. J. Solids Structures*, **Vol. 6**, (1970b), pp. 797-807.
- Lahellec, N. et Suquet, P., "Effective behavior of linear viscoelastic composites: A time-integration approach", *Int. J. of Solids and Structures*, **44**, (2007a), pp. 507–529.
- Lahellec, N. et Suquet, P., "On the effective behavior of nonlinear inelastic composites: I. Incremental variational principles", *J. of the Mechanics and Physics of Solids*, **55**, (2007b), pp. 1932–1963.
- Lahellec, N. et Suquet, P., "On the effective behavior of nonlinear inelastic composites: II. A second-order procedure", *J. of the Mechanics and Physics of Solids*, **55**, (2007c), pp. 1964–1992.
- Lahellec, N. et Suquet, P., "Effective response and field statistics in elasto-plastic and elasto-viscoplastic composites under radial and non-radial loadings", *Int. J. of Plasticity*, **42**, (2013), pp.1-30.
- Malekmohammadi, S., Tressou, B., Nadot-Martin, C., Ellyin, F. and Vaziri, R., "Analytical micromechanics equations for elastic and viscoelastic properties of strand-based composites", *J Composite Mater.*, (2013), doi: 10.1177/0021998313490977.
- Ponte Castaneda P., "New variational principles in plasticity and their application to composite materials", *J. Mech. Phys. Solids*, **40**, 8, (1992), pp. 1757-1788.