

## **Effet de la formation de l'interface et des propriétés des fibres dans le comportement mécanique de composites bio-sourcés fabriqués par infusion**

### **Interface formation versus fibres properties: effects on mechanical behaviour of bio-based composites manufactured by infusion**

**Pierre-Jacques Liotier<sup>1</sup>, Monica Francesca Pucci<sup>2</sup>, Antoine Le Duigou<sup>3</sup>, Antoine Kervoelen<sup>3</sup>, Jacopo Tirilló<sup>4</sup>, Fabrizio Sarasini<sup>4</sup>, Sylvain Drapier<sup>1</sup>**

1 : Mines Saint-Etienne, Univ Lyon, CNRS, UMR 5307 LGE, SMS/MPE,  
F-42023, Saint-Etienne, France  
e-mail : [liotier@emse.fr](mailto:liotier@emse.fr)

2 : C2MA, IMT Mines Alès, Univ Montpellier, Alès, France

3 : Univ Bretagne Sud, IRDL UMR CNRS 6027, Centre de recherche C. Huygens, 56100, Lorient, France

4 : Chemical Engineering Materials Environment dept, Sapienza Università di Roma, Via Eudossiana 18, 00184, Rome, Italy

### **Résumé**

Le but de la présente étude est de prouver l'effet d'une modification d'énergie de surface de fibres de lin par traitement thermique sur le comportement mécanique de composites bio-sourcés. Il a été montré que ce traitement améliore le mouillage des fibres par de la résine époxy en réduisant le taux de porosité dans le composite. Des tests visant à évaluer les propriétés mécaniques des fibres élémentaires, des fils et du composite ont été menés. La conclusion est que, même si les fibres élémentaires et les fils ont été fragilisés et que le travail d'adhésion a diminué, comme le mouillage a été amélioré, le comportement mécanique des composites renforcés par des fibres traitées, élaborée par infusion, est meilleur.

### **Abstract**

The aim is to study the effect of the modification of the free surface energy of flax fibres by a thermal treatment on the mechanical behaviour of bio-based composites. It has been proved that this modification enhances the wettability of flax fibers by epoxy resin and results in a lower porosity amount in composites. Tests to evaluate mechanical properties of elementary fibres, yarns and composites have been performed. The main conclusion is that, even if elementary fibres and yarns have been embrittled and work of adhesion has been lowered after thermal treatment, since the wettability of fibers has been improved, the mechanical behaviour of composites manufactured by LCM is better with treated fibers.

**Mots Clés :** Fibres naturelles ; Procédé d'élaboration par voie liquide ; Porosités

**Keywords :** Natural fibres; Liquid Composite Molding; Porosity

### **1. Introduction :**

La présente étude détaille les effets de la modification de l'énergie de surface de fibres de lin par traitement thermique sur le comportement de composites bio-sourcés élaborés par procédés directs. Il a été prouvé précédemment [1-2] que cette modification facilite l'imprégnation des fibres par de la résine époxy, ce que induit un taux de porosités moindre dans le bio-composite. Le comportement mécanique des fibres, des mèches, de l'interface et du composite a été caractérisé. La principale conclusion de cette étude multi-échelle est que, même si les fibres ont été fragilisées et que les propriétés de l'interface ont été dégradées, le comportement mécanique des bio-composites renforcés par des fibres traitées est meilleur, sans doute du fait de la meilleure qualité de l'imprégnation lors de la fabrication par procédé direct.

### **2. Matériaux et procédé d'élaboration :**

Des tissus quasi-unidirectionnels ont été fournis par Libeco (FLAXDRY UD 180®). Leur grammage est de 180 g/m<sup>2</sup>. Ce tissu a été soumis à une température de 220 °C pendant 2 h sous

atmosphère inerte [1–3]. La référence LN désignera par la suite le lin non-traité et LR le lin traité. Les fibres élémentaires ont été extraites des mèches provenant des tissus (Fig. 1). La résine époxy utilisée est la SP106® de Gurit.

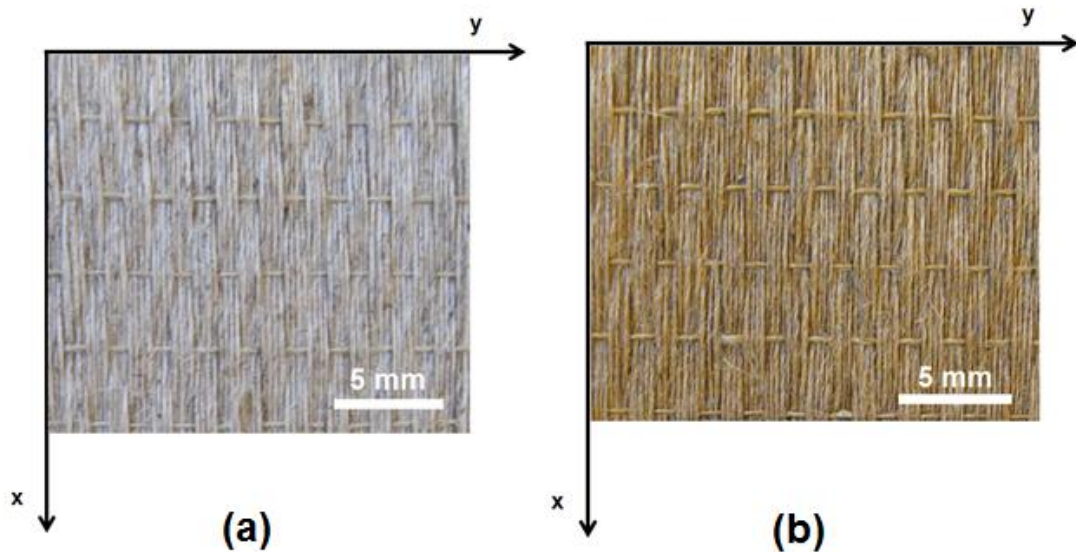


Fig. 1. Tissus quasi-unidirectionnels de lin vierge (a) et traité (b).

Des plaques renforcées pour moitié de tissus en lin traité et non traité ont été élaborées par infusion sous bâche à vide. Les infusions ont été réalisées à MINES Saint-Etienne. La stratégie d’infusion se base sur l’imprégnation à travers l’épaisseur de la plaque suivant l’expérience acquise par le laboratoire sur l’élaboration de composites hautes performances pour l’aéronautique. Les renforts ont été placés comme le décrit la Fig. 2 pour garantir les mêmes conditions d’élaboration dans les deux émis-plaques.

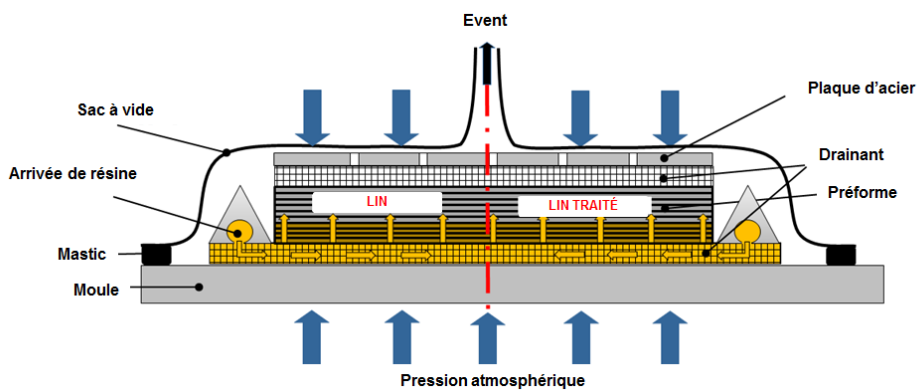


Fig. 2. Stratégie d’infusion pour garantir des condition d’élaboration similaires dans les deux renforts.

Les études précédentes ont montré que la modification des énergies de surface des fibres a un effet sur la cinétique d’imprégnation du tissu [1-3], qui est plus rapide dans le cas du lin traité. Cet effet a été observé aussi à une échelle plus fine, induisant un taux de microporosités moindre dans le composites renforcé par du lin traité comme le montrent les tomographies présentées en Fig. 3 [2].

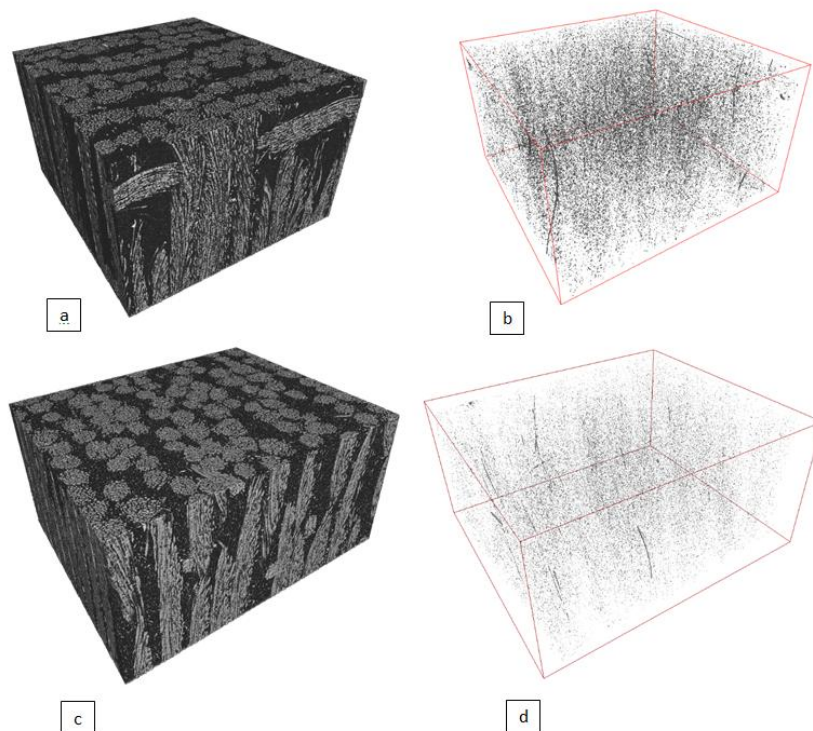


Fig. 3. Caractérisation des microporosités par micro-tomographie sur des composites renforcés par du lin non-traité (a ;b) et traité (c ;d).

### 3. Comportement mécanique des fils extraits des tissus :

Les tests de traction uni-axiale sur les fils ont été menés avec un Zwick/Roell Z10 avec un capteur de force de 200 N. Trois différentes longueurs de fils ont été testées, 20, 30 et 40 mm, pour valider la fiabilité du système. Les fils ont été collés individuellement sur des cadres de papier avec une fenêtre découpée à la longueur souhaitée. La vitesse de déplacement de la travée a été fixée à  $2 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$ . Ces tests ont été menés à la Sapienza de Rome.

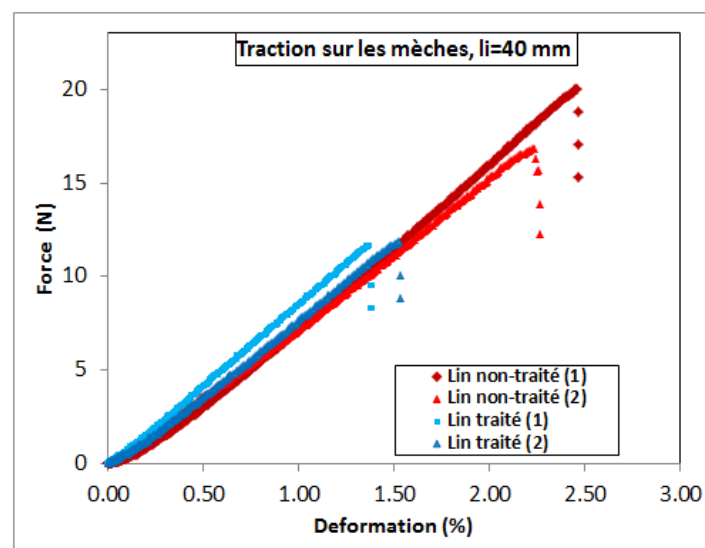


Fig. 4. Comportement en traction uni-axiale de fil de lin extrait de tissus traité et non-traité.

Echantillons (Longueur)	Force à rupture (N)	Déformation à rupture (%)
LN (20 mm)	18,43±3,15	2,61±0,29
LN (30 mm)	17,04±3,18	2,33±0,26
LN (40 mm)	18,01±3,25	2,49±0,24
LR (20 mm)	11,14±1,99	1,66±0,17
LR (30 mm)	9,74±2,06	1,47±0,21
LR (40 mm)	10,88±1,94	1,52±0,14

Tab. 1. Résultats en forces et déformations à rupture obtenus sur plusieurs longueurs de fils.

Les résultats présentés en Tab. 1 prouvent la fiabilité de la méthode et son indépendance en la longueur testée. On constate également sur la Fig. 4 et en Tab. 1 que le traitement thermique n'affecte pas le module élastique des fils (la pente est inchangée) mais la force à rupture ainsi que la déformation à rupture est considérablement réduite.

#### 4. Comportement mécanique des fibres élémentaires extraites des fils :

Les tests ont été menés sur 25 fibres élémentaires de chaque type. Une longueur de 10 mm a été choisie et une machine MTS équipée d'un capteur de force de 2 N a été utilisée. Ces tests ont été menés dans un laboratoire à température et humidité relative contrôlées ( $23 \pm 0.5$  ° C,  $48 \pm 2$  % RH). Ces essais ont été réalisés à UBS de Lorient.

Echantillons (Longueur)	Diamètre ( $\mu\text{m}$ )	Module élastique (GPa)	Contrainte à rupture (Mpa)	Déformation à rupture (%)
LN	16,4±4,1	39±11	1009±392	2,50±1,40
LR	16,0±4,0	38±10	447±216	1,50±0,60

Tab. 2. Résultats obtenus en traction sur fibre élémentaire.

Les résultats résumés en Tab. 2 confirment ceux obtenus à l'échelle du fil : le module élastique est inchangé mais une fragilisation nette est observée. La contrainte calculée à la rupture est réduite de moitié et l'élongation à rupture est également considérablement amoindrie.

Afin de tester les propriétés d'interface, des gouttelettes de résine (la même que celle utilisée pour les infusions) ont été déposées sur des fibres de chaque type. Celles-ci ont ensuite été observées au microscope pour contrôler leur géométrie et éliminer les échantillons présentant des défauts. Seules les gouttelettes symétriques et avec une taille inférieure à 150  $\mu\text{m}$  (pour éviter la rupture des fibres) ont été testées. 25 échantillons pour chaque type de fibres ont été testés, toujours à Lorient.

Echantillons (Longueur)	IFSS (MPa)	Contrainte de glissement (Gpa)
LN	10,7±2,2	2,7±2,8
LR	7,0±2,0	3,1±1,0

Tab. 3. Résultats obtenus en déchaussement de micro-gouttes.

On observe en Tab. 3 que, comme le laissait présager les résultats d'étude précédentes sur l'énergie de surface des fibres après traitement [2], la contrainte à rupture de l'interface a significativement diminuée. Cela tend à montrer que l'interface fibre/matrice dans le composite devrait être moins tenace pour les fibres de lin traitées.

#### 5. Composite

Des essais de flexion 3 points sur appuis rapprochés (Short Beam Shear Tests-SBST) ont été menés selon la norme ASTM D2344 [4] afin d'évaluer la résistance au cisaillement interlaminaire de composite renforcés par les deux type de tissus à l'étude. 5 échantillons de chaque type avec une

surface de  $5 \times 30 \text{ mm}^2$  ont été testés. L'épaisseur des échantillons était de 3 mm pour le non-traité et 3,2 pour le traité soit une fraction volumique de fibres de 41,4% pour les fibres non-traitées et de 38,8% pour les fibres traitées. Pour rester conforme à la norme, l'espacement entre les points d'appuis a été fixé à 16 mm. Ces essais ont été réalisés à MINES Saint-Etienne.

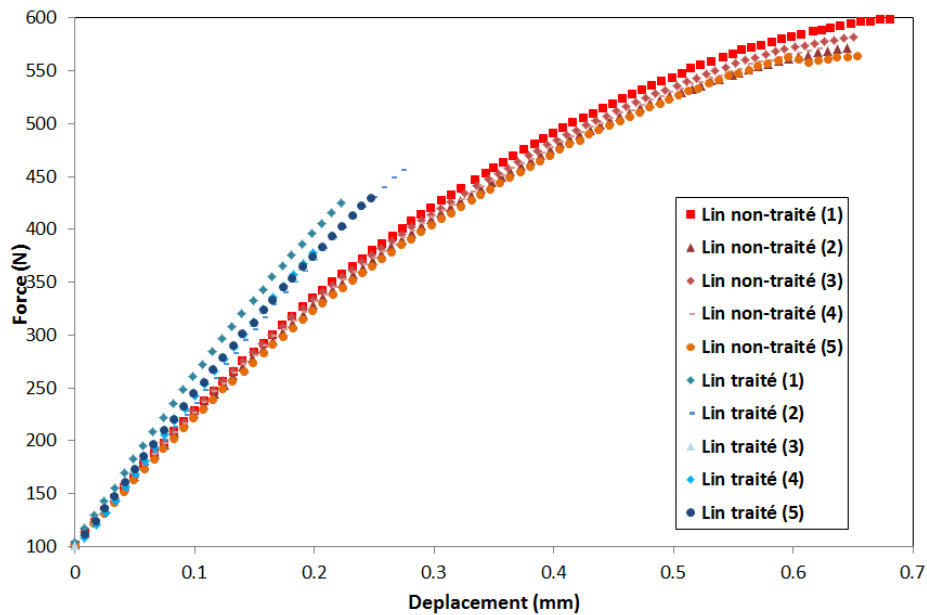


Fig. 5. Comportement en flexion 3 points sur appuis rapprochés de composites renforcés par du lin traité et non-traité.

Echantillons	Contrainte à la perte de linéarité (MPa)	Contrainte à rupture (MPa)
LN1	16.5	29.9
LN2	16.5	28.5
LN3	16.2	28.2
LN4	16.6	28.2
LN5	16.7	28.2
LR1	19.6	19.6
LR2	21.2	21.2
LR3	18.7	18.7
LR4	16.8	16.8
LR5	19.7	19.7

Tab. 4. Résultats obtenus en flexion 3 points sur appuis rapprochés.

Les résultats en SBST sont résumés en Tab. 4 et les courbes en force/déplacement obtenues sont montrées en Fig. 5. Il apparaît que les échantillons renforcés par des fibres non-traitées dissipent plus d'énergie lors de l'essai mais il est cependant difficile de conclure comme ces mêmes échantillons ont, tous, un comportement non-conforme. Seuls les tests sur les échantillons renforcés par du lin traité sont conformes. Nous pourrions nous risquer à comparer les pertes de comportement linéaire (à rupture pour les échantillons renforcés par du lin traité) mais il est difficile d'en déterminer la position exacte en ce qui concerne les échantillons renforcés par du lin non-traité.

Suite à ce constat et pour évaluer la résistance à la flexion des composites élaborés, des tests de flexion 4 points ont été menés. Une distance de 20 mm entre chaque point d'appuis a été respectée pour une longueur totale de 60 mm entre les appuis extérieurs, selon la norme ASTM D7264 [5].

Les dimensions des échantillons ont été fixés à  $75 \times 25 \times 3 \text{ mm}^3$ . Une précharge de 50 N a été imposée ainsi qu'un déplacement de la traverse à une vitesse de  $1 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$ . 6 échantillons ont été testés pour chaque type de composites, toujours à MINES Saint-Etienne.

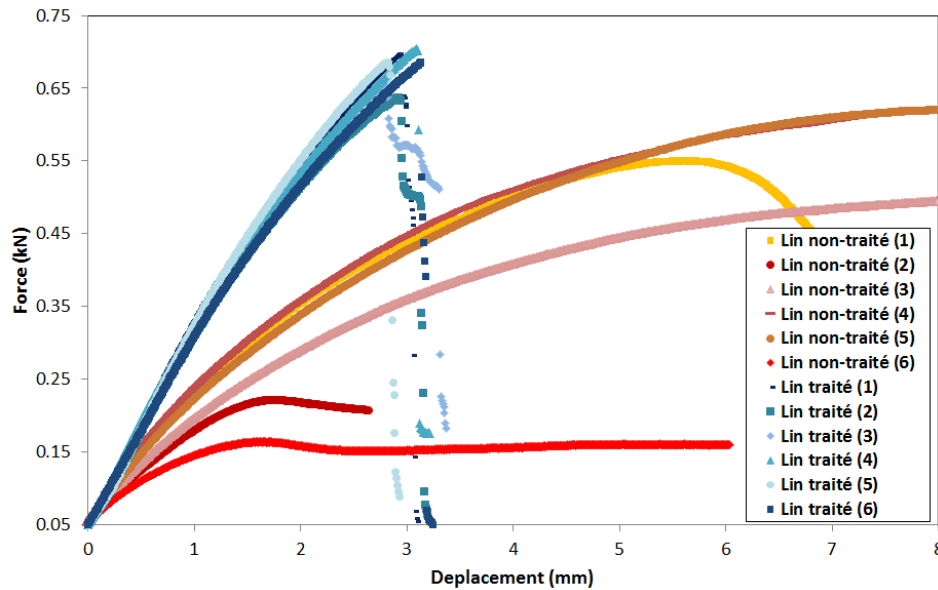


Fig. 6. Comportement en flexion 4 points de composites renforcés par du lin traité et non-traité.

Echantillons	Contrainte à rupture (MPa)	Echantillons	Contrainte à rupture (MPa)
LN1	146,7	LR1	186,1
LN2	59,2	LR2	170,1
LN3	133,7	LR3	175,5
LN4	168,2	LR4	187,7
LN5	166,2	LR5	183,0
LN6	43,7	LR6	182,8

Tab. 5. Résultats obtenus en flexion 4 points.

La Fig. 6 montre les courbes force/déplacement et le Tab. 5 les résultats de contrainte à rupture. Il apparaît alors que la contrainte à rupture la plus élevée est calculée pour les composites renforcés par des tissus traités. Cela est sans doute dû à l'imprégnation plus régulière de ces fibres par la résine. Ce constat est renforcé par le fait que des échantillons renforcés par du lin non-traité se sont révélés inexploitable, sans doute à cause de problèmes d'imprégnation à plus grande échelle (LN2 et LN6). De plus, si l'on calcule la rigidité de ces deux types de composites, il apparaît en Fig. 7 que les composites renforcés par des fibres traités ont un module effectif plus élevé. Enfin, un comportement non linéaire d'endommagement progressif a été systématiquement observé sur les composites renforcés par du lin non-traité. Cela se traduit par un comportement pseudo-ductile et une déformation permanente sans rupture évidente après essais, comme présenté en Fig. 8. Il est alors, en effet, difficile de parler de rupture nette mais il est possible de constater un effondrement des propriétés mécaniques (le Tab. 5 répertorie dans ce cas la contrainte maximale). En résumé, même avec des fibres fragilisées et une interface dégradée, si le mouillage est amélioré, il est possible d'élaborer un composite plus performant car comportant moins de microporosités et donc une surface spécifique d'interface plus grande.

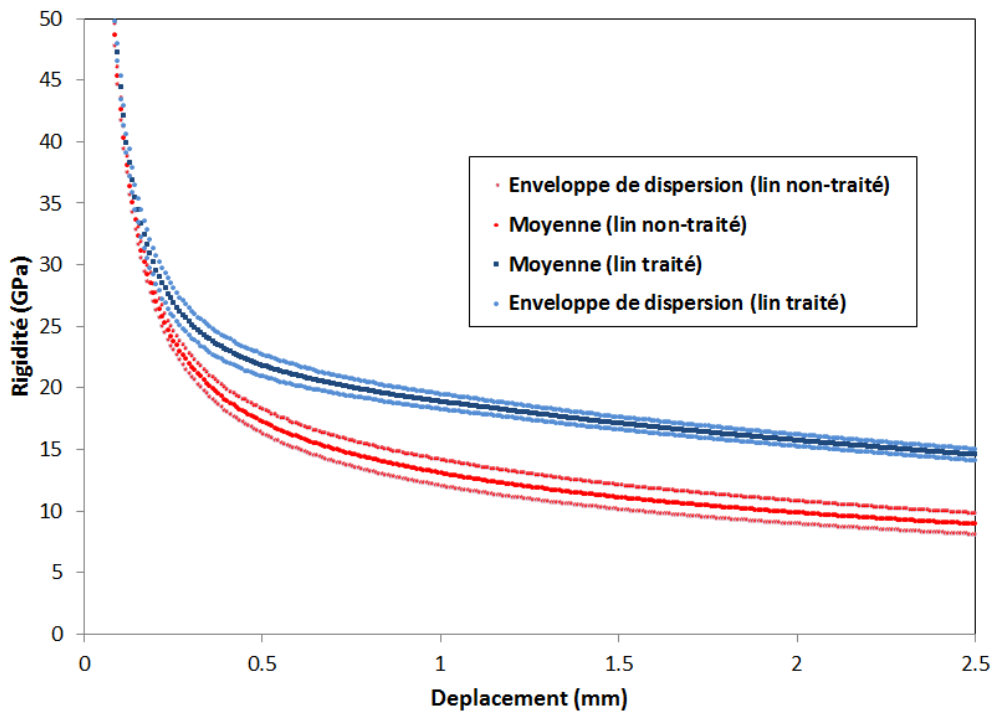


Fig. 7. Rigidité équivalente calculée pendant l'essai de flexion 4 points sur des composites renforcés par du lin traité et non-traité.

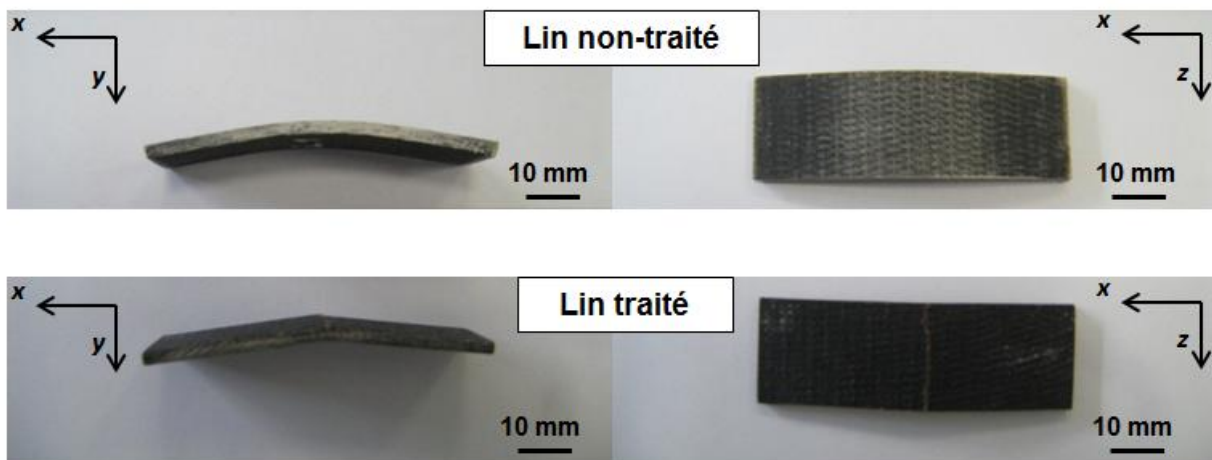


Fig. 8. Eprouvettes de flexion 4 points après rupture.

## Conclusions

La présente étude a démontré que le traitement thermique a un effet négatif sur la ténacité des fibres élémentaires et des mèches même si le module élastique ne semble pas être impacté. Il a également été montré que la ténacité de l'interface fibre/résine est réduite pour ces fibres traitées thermiquement (ce qui était prévisible car l'énergie de surface des fibres a été diminuée [2]). Malgré ces diminutions de propriétés, des essais de flexion 4 points menés sur des éprouvettes renforcées par des tissus traités et non-traités, élaborées dans des conditions rigoureusement identiques, ont montré que les éprouvettes renforcées par le lin traité ont un meilleur comportement mécanique statique, en terme de rigidité et ténacité. Il peut également être remarqué que les éprouvettes

renforcées par du lin vierge ont un comportement presque ductile (Fig. 8, haut), qui aurait été considéré comme non conforme pour des composites petrosourcés. Les éprouvettes renforcées par du lin traité, quant à elles, montrent une rupture fragile (Fig.8, bas) à une valeur de contrainte impossible à atteindre avec les éprouvettes renforcées par du lin vierge.

Le taux de microporosités ayant été quantifié comme significativement inférieur dans le cas du composite renforcé par des fibres traitées, l'hypothèse d'une aire d'interface fibre/matrice supérieure, expliquant le meilleur comportement mécanique, semble pertinente. La conclusion est donc que la qualité intrinsèque de la fibre unitaire et/ou de son interface avec la résine ne fait pas la qualité du composite et que les propriétés de surface et l'imprégnation jouent en rôle fondamental sur les porosités induites par le procédé d'élaboration et donc sur les propriétés finales du composite. Ces résultats sont détaillés dans une publication récente [6].

## Références

- [1] Pucci MF, Liotier P-J, Drapier S. Capillary effects on flax fibers–modification and characterization of the wetting dynamics. *Compos Appl Sci Manuf* 2015;77:257–65.
- [2] Pucci MF, Liotier P-J, Seveno D, Fuentes C, Van Vuure A, Drapier S. Wetting and swelling property modifications of elementary flax fibres and their effects on the liquid composite molding process. *Compos Appl Sci Manuf* 2017;97:31–40.
- [3] Pucci MF, Liotier P-J, Drapier S. Capillary wicking in flax fabrics–effects of swelling in water. *Colloid Surface Physicochem Eng Aspect* 2016;498:176–84.
- [4] D2344/d2344m- 16 standard test method for short-beam strength of polymer matrix composite materials and their laminates.
- [5] Astm d7264m - 15 standard test method for flexural properties of polymer matrix composite materials.
- [6] Liotier P-J, Pucci MF, Le Duigou A., Kervoelen A., Tirillo J, Sarasini F, Drapier S. Role of interface formation versus fibres properties in the mechanical behaviour of bio-based composites manufactured by Liquid Composite Molding processes. *Composites Part B* 2019:163;86–95