

# Effet de l'absorption d'humidité sur le comportement multi-échelles de bio-composites à fibres de lin

## *Effect of moisture absorption on the multi-scale behavior of flax fibers reinforced composites*

Ziad El Hachem<sup>1</sup>, Amandine Céline<sup>1</sup>, Georges Challita<sup>2</sup> et Sylvain Fréour<sup>1</sup>

1 : Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (UMR CNRS 6183)

Université de Nantes, Centrale Nantes

58 rue Michel Ange, F-44600 Saint-Nazaire

[ziad.el-hachem@univ-nantes.fr](mailto:ziad.el-hachem@univ-nantes.fr), [amandine.celino@univ-nantes.fr](mailto:amandine.celino@univ-nantes.fr) et [sylvain.freour@univ-nantes.fr](mailto:sylvain.freour@univ-nantes.fr)

2 : Centre de Recherche Scientifique en Ingénierie (CRSI) Equipe MMC

Université Libanaise

Faculté de Génie, Campus Roumieh, Liban

[georges.challita@ul.edu.lb](mailto:georges.challita@ul.edu.lb)

### Résumé

En raison du comportement hydrophile des fibres naturelles, les bio-composites à base de fibres végétales et de matrice polymérique rencontrent encore des obstacles qui freinent leur développement à grande échelle. L'objectif de cette étude est donc d'évaluer les phénomènes d'absorption de l'humidité à plusieurs échelles au sein d'un matériau bio-composite unidirectionnel renforcé de fibres de lin. Les effets du taux de fibres, de l'agent couplant et de l'humidité relative sur la cinétique de diffusion sont également étudiés. Les matériaux sont constitués d'une matrice polypropylène (avec ou sans agent couplant : anhydride maléique) avec différents taux de fibres. Les échantillons ont été soumis à un vieillissement humide à deux humidités relatives (75 % et 95 %) et à une température de 23°C. Les résultats montrent une augmentation significative de l'absorption d'humidité avec l'augmentation du taux de fibres et de l'humidité relative. Cependant, avec l'ajout d'agent couplant, les composites présentent une diminution de leur hydrophilie, attribuée à une meilleure adhérence à l'interface fibre/matrice. Il est intéressant de noter qu'une fois les fibres incorporées dans la matrice, les propriétés macroscopiques globales du composite ne satisfont pas la loi des mélanges classique, particulièrement en ce qui concerne la capacité maximale d'absorption d'humidité.

### Abstract

Bio-composites still face some obstacles which are slowing down their development in new industries, due to the hydrophilic behavior of natural fibers. The aim of the present study is to investigate the multi-scale moisture diffusion phenomena in a unidirectional bio-composite material reinforced with flax fibers. The effects of fiber fraction, coupling agent and relative humidity on diffusion kinetics have been studied also. The investigated composites consist of a polypropylene matrix with various flax fiber contents, to which maleic anhydride was added as a coupling agent. Samples were submitted to wet aging at two different relative humidity conditions (75 % and 95 %) and at a temperature of 23°C. Results have shown significant increase of moisture absorption with the increase of fiber content and relative humidity. However, after adding the coupling agent, composites have shown a decrease in moisture absorption due to the better adhesion at the fiber/matrix interface. It is noteworthy that once the fibers are incorporated in the matrix, the overall macroscopic property of the composite does not satisfy the classical laws of mixtures, even for the maximum moisture absorption capacity.

**Mots Clés :** bio-composite, vieillissement humide, multi-échelle

**Keywords:** bio-composite, wet aging, multi-scale

## 1. Introduction

Dans le domaine des matériaux composites, les fibres végétales représentent une bonne alternative aux fibres de verre pour le renforcement de matrices polymériques. Il s'agit d'une ressource naturelle, renouvelable et biodégradable possédant de très bonnes propriétés mécaniques spécifiques. Les matériaux bio-composites ont des applications prometteuses dans le secteur de l'automobile, des sports et loisirs, ainsi que dans le domaine du nautisme. Cependant, il existe encore quelques obstacles

qui ralentissent leur développement à grande échelle. En particulier, la question de leur durabilité est souvent mise en avant. En effet, exposées à de l'air humide, les fibres d'origine végétale absorbent jusqu'à 20 % en masse d'eau, ce qui provoque, d'une part, un gonflement hygroscopique et, d'autre part, une évolution de leurs propriétés mécaniques et physico-chimiques, entre autres [1-2]. A l'échelle du composite, il y a donc diffusion d'humidité dans les deux matériaux constitutifs (les fibres et la matrice) avec potentiellement deux lois de diffusion et des capacités maximales d'absorption très différentes. Ceci favorise l'apparition de contraintes internes multi-échelles dépendant des facteurs suivants : distribution de la teneur en eau en fonction de l'épaisseur, propriétés des différents constituants, morphologie, type d'empilement [3]. Pour appréhender ces différents phénomènes, il est intéressant, dans un premier temps, d'analyser le comportement purement hygroscopique du matériau aux différentes échelles. Ceci constitue l'objectif du travail présenté dans ce papier. Pour cela, différents bio-composites PP/lin avec et sans agent couplant et contenant différents taux de fibres ont été vieillis dans des conditions d'humidité relative contrôlée. Les constituants (fibres de lin et matrice polymérique) ont également été conditionnés en environnement humide.

## 2. Matériaux et Méthodes

### 2.1 Matériaux

Les matériaux élaborés sont des composites unidirectionnels à matrice thermoplastique polypropylène (PP) renforcée par des fibres de lin.

Les nappes de fibres unidirectionnelles (50 g/m<sup>2</sup> et 200 g/m<sup>2</sup>) ont été fournies par l'entreprise Lineo®. Les films de Polypropylène certains purs (PP) et certains greffés à l'anhydride maléique (PPgMa) (PPC 3660 Total Petrochemicals et Arkema Orevac CA 100) ont été utilisés comme matrice. L'empilement de films de polymère PP, PPgMa et de plis de nappes unidirectionnels de lin a été préparé dans un moule métallique.

La fraction volumique de fibres est variable. Deux fractions volumiques ont été retenues : 20 et 40 %. L'épaisseur des stratifiées est d'environ 2 mm. Les conditions du procédé de thermocompression utilisées sont similaires à celles publiées par Le Duigou et al [4]. La vitesse de refroidissement a été fixée à 15<sup>0</sup>C/min. La géométrie des éprouvettes à la sortie du moule est de 98x98x1,96 mm<sup>3</sup>. Des éprouvettes de résine pure (PP et PPgMa) ont également été mises en œuvre.

La figure 1 ci-dessous représente les nomenclatures des matériaux utilisés.

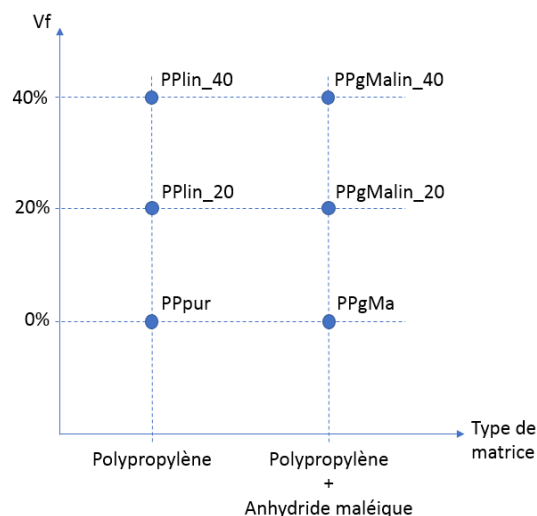


Fig. 1. Nomenclatures des matériaux

## 2.2 Méthode

Des campagnes de vieillissement humide ont été lancées sur les différents matériaux, pour identifier le comportement diffusif des composites, de la matrice, et des fibres de lin, d'une part, et pour mieux comprendre l'effet de l'agent couplant, du taux de fibres et des conditions environnementales d'humidité relative sur le processus de diffusion des matériaux bio-composites, d'autre part. En pratique, ces matériaux (composites et matrice pure) ont été placés dans des armoires contrôlées en humidité relative (HR) par l'intermédiaire de sels hygroscopiques : 75 % HR (NaCl) et 95 % HR (K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>), à une température ambiante de 23°C. Afin de s'assurer du contrôle de l'humidité relative et de la température, chacune des armoires est équipée d'un capteur qui relève en continu les conditions environnementales (HR ± 3 % et T ± 0.3°C). Avant cette campagne de vieillissement humide, toutes les éprouvettes ont été séchées dans un dessiccateur. Les masses obtenues à l'issue de cette campagne de séchage sont celles constituant l'état de référence (masses initiales  $m_0$ ). Un relevé gravimétrique régulier a permis de s'assurer que les éprouvettes avaient atteint l'état de référence recherché, qui correspond à un champ de teneur en eau uniforme dans l'épaisseur. Ces pesées ont été obtenues à l'aide d'une balance de précision de 0,01 mg (Sartorius MC1 Analytic AC210P).

La caractérisation du comportement diffusif des différents bio-composites se fait par l'intermédiaire de relevés gravimétriques réguliers au cours du temps. A partir de ces relevés gravimétriques, il est possible de remonter à la fraction massique d'eau contenue dans l'éprouvette (Eq. 1) et donc de tracer l'évolution de cette fraction massique d'eau (ou teneur en eau) en fonction du temps. Le type de courbe obtenue constitue la cinétique de diffusion du matériau.

$$Mt (\%) = 100 \times \frac{m(t) - m_0}{m_0} \quad (\text{Eq. 1})$$

Avec  $m_0$ , la masse initiale obtenue au début du vieillissement humide et donc à la fin du séchage.  $m(t)$  et  $Mt(\%)$  représentent respectivement la masse et la teneur en eau obtenues à chaque instant « t » du vieillissement humide.

Durant le vieillissement, les pesées ont été réalisées à des intervalles de temps réguliers. Ces mesures ont été prises beaucoup plus fréquemment au début du vieillissement afin de mieux capter la première phase transitoire de la cinétique de diffusion.

Dès lors que les masses respectives des échantillons ne varient plus, cela signifie que les échantillons ont atteint la saturation en humidité. Ceci se traduit par un plateau observé sur les cinétiques de diffusion.

De plus, afin de pouvoir étudier le comportement multi-échelle de nos matériaux, des essais en DVS (Dynamic Vapor Sorption) ont été réalisés sur les fibres de lin à différentes conditions d'humidité relative. Les fibres ont été exposées au profil suivant : 0 à 95 % d'HR avec un pas de 10 % et à une température de 23°C. L'équilibre de masse a été atteint à chaque niveau d'humidité relative considéré, soit en mesurant le pourcentage de changement de masse par rapport au temps, soit en suivant l'évolution de la pente des cinétiques de diffusion, ce qui a permis de retracer leur isotherme de sorption.

## 3. Résultats et discussion

Les figures 2 et 3 représentent les cinétiques de diffusion obtenues pour la totalité des matériaux étudiés, lors d'un vieillissement à des humidités relatives respectives de 75 % et 95 %, à température ambiante de 23°C.

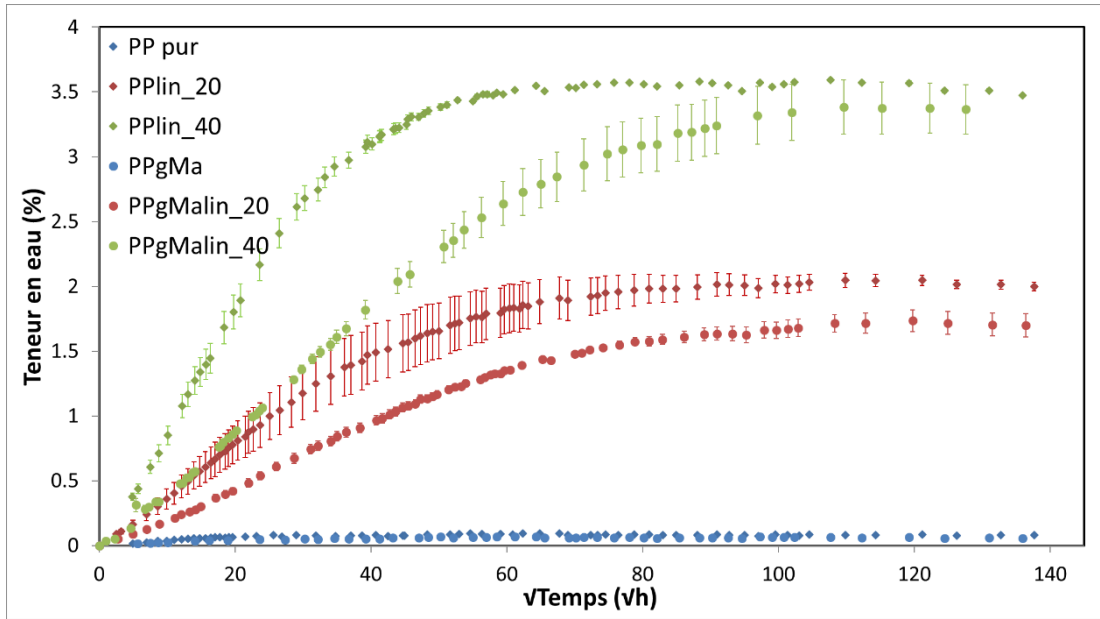


Fig. 2. Cinétiques de diffusion pour les différents matériaux à 75 % HR

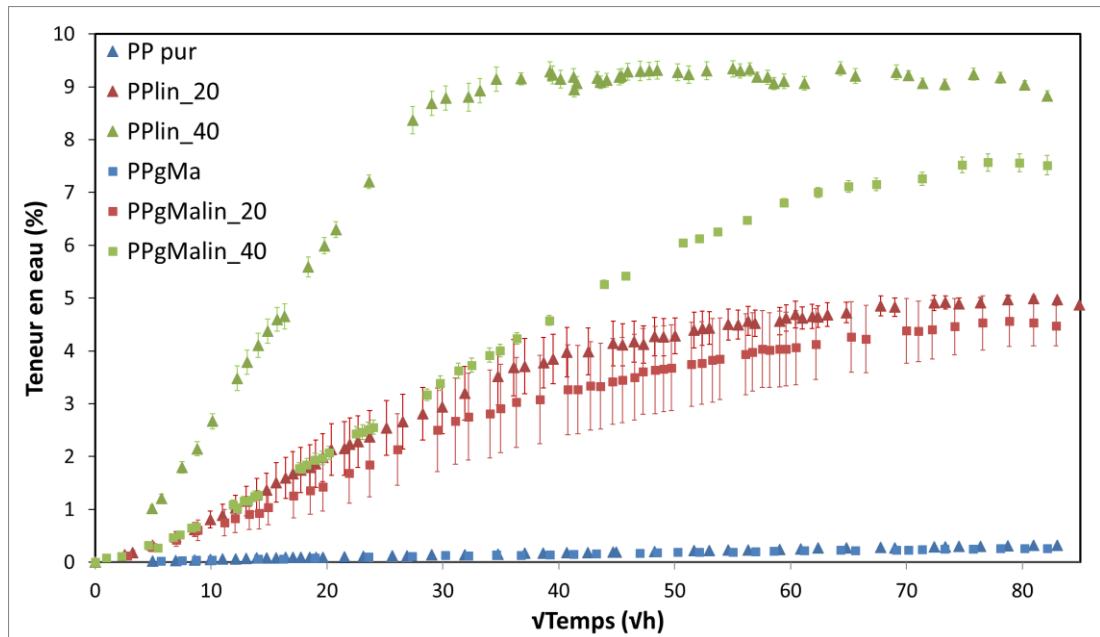


Fig. 3. Cinétiques de diffusion pour les matériaux à 95 % HR

On constate que pour un même taux de renfort et une condition d'humidité relative constante, les composites contenant l'agent couplant (anhydride maléique) atteignent des teneurs en eau largement inférieures à celles obtenues dans le cas d'éprouvettes dépourvues d'agent couplant, pour les deux humidités relatives testées. On observe également un ralentissement de la vitesse de diffusion avec l'ajout d'agent couplant.

Plusieurs hypothèses peuvent être proposées pour expliquer ce résultat. Premièrement, ceci pourrait être dû à l'effet de l'agent couplant, qui améliorerait l'adhésion à l'interface fibre-matrice [5-6]. De ce fait, la quantité et le volume des porosités présentes à l'interface diminueraient. Il s'ensuivrait alors une réduction de l'espace libre pour la circulation et le stockage de l'eau qui expliquerait la diminution de la capacité maximale d'absorption d'humidité, par comparaison avec les échantillons dépourvus

d'agent couplant. Selon Wielage et al [7], l'utilisation de l'agent couplant pourrait conduire à une formation de liaisons covalentes entre les groupements fonctionnels de surface des fibres et les composants réactifs dans la matrice. La formation de liaisons covalentes avec certains groupements polaires des fibres expliquerait une capacité d'absorption d'eau moindre (notamment en régime permanent). Ceci a également été souligné par différents autres travaux [8-9-10]. Il est en fait possible que le volume occupé par l'interphase soit plus important en l'absence d'agent couplant, d'où une contribution plus importante. En effet, la moindre affinité entre la matrice et les fibres peut être associée à une zone perturbée plus épaisse en absence d'agent couplant qu'en sa présence, d'où une interphase plus volumineuse. Cette interphase, moins dense en absence d'agent couplant, induirait un coefficient de diffusion et une capacité maximale d'absorption d'humidité plus élevés.

Pour les éprouvettes de polypropylène, l'ajout d'agent couplant ne joue pas un rôle significatif. La capacité maximale d'absorption est égale à 0,06 % et 0,08 % respectivement pour le polypropylène avec et sans anhydride maléique.

De plus, on remarque que l'ajout de fibres de lin dans une matrice polypropylène augmente de façon très nette la reprise en eau du matériau et d'autant plus que la fraction volumique de fibre augmente. Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus par des études précédentes, qui ont également observé une augmentation des valeurs d'absorption d'eau à l'équilibre avec l'augmentation du taux volumiques des fibres dans les composites [12-14].

D'ailleurs, il est intéressant de noter, que la capacité maximale d'absorption d'humidité est proportionnelle au taux de fibre. En effet, afin de mieux comprendre cette proportionnalité, on a calculé le rapport entre les capacités maximales d'absorption ( $M_{\infty}$ ) des échantillons à 20 et 40 % de fibres (Eq. 2) sans agent de couplage ( $R_{PPlin}$ ) et avec agent couplage ( $R_{PPgMalin}$ ) (Tab.1).

$$R_{PPlin} = \frac{M_{\infty}(PPlin_{40})}{M_{\infty}(PPlin_{20})} \quad \text{et} \quad R_{PPgMalin} = \frac{M_{\infty}(PPgMalin_{40})}{M_{\infty}(PPgMalin_{20})} \quad (\text{Eq. 2})$$

On remarque que ces rapports sont relativement proches à 75 % et 95 % d'humidité relative pour les échantillons avec et sans agent couplant (Tab. 1). Ces résultats sont conformes à certains travaux déjà publiés, qui montrent que la teneur en eau à la saturation dépend à priori uniquement des capacités maximales d'absorption des fibres, de la matrice et des fractions massiques des constituants [4-11].

Type de matériau	Teneur en eau à la saturation (%)	
	75 % d'humidité relative	95 % d'humidité relative
PPlin_20	1,99 ± 0,07	4,91 ± 0,15
PPlin_40	3,55 ± 0,01	9,15 ± 0,17
$R_{PPlin}$	1,78 ± 0,06	1,86 ± 0,02
PPgMalin_20	1,63 ± 0,06	4,53 ± 0,43
PPgMalin_40	3,10 ± 0,21	7,52 ± 0,19
$R_{PPgMalin}$	1,90 ± 0,06	1,66 ± 0,12

Tab. 1. Teneur en eau à la saturation des bio-composites à 75 % et 95 % d'HR

Il est intéressant de noter que les bio-composites qui ont atteint la saturation, présentent tous des cinétiques de diffusion ayant une allure similaire [15-16-17]. L'allure Fickienne obtenue pour les composites est similaire à celle obtenue pour les fibres naturelles [1], ce qui met en relief le caractère dominant des fibres naturelles sur le comportement hygroscopique des bio-composites.

D'autre part, la comparaison des cinétiques de diffusion d'un même type d'éprouvettes dans les deux environnements humides montre que la teneur en eau absorbée à la saturation à une humidité relative de 95 % est beaucoup plus importante que celle obtenue à une humidité relative de 75 % (Fig. 4). En effet, à des humidités relatives importantes, lorsque la concentration en eau dépasse un certain seuil, celle-ci entraîne la formation de clusters de molécules d'eau majoritairement à l'interface fibre/matrice, qui attire les molécules d'eau à se regrouper les unes aux autres. De plus, à l'échelle des fibres, il semblerait que l'eau sous forme de vapeur pénètre dans la fibre et casse les liaisons secondaires entre les macromolécules de cellulose, permettant de créer de plus grands volumes accessibles à l'eau [18].

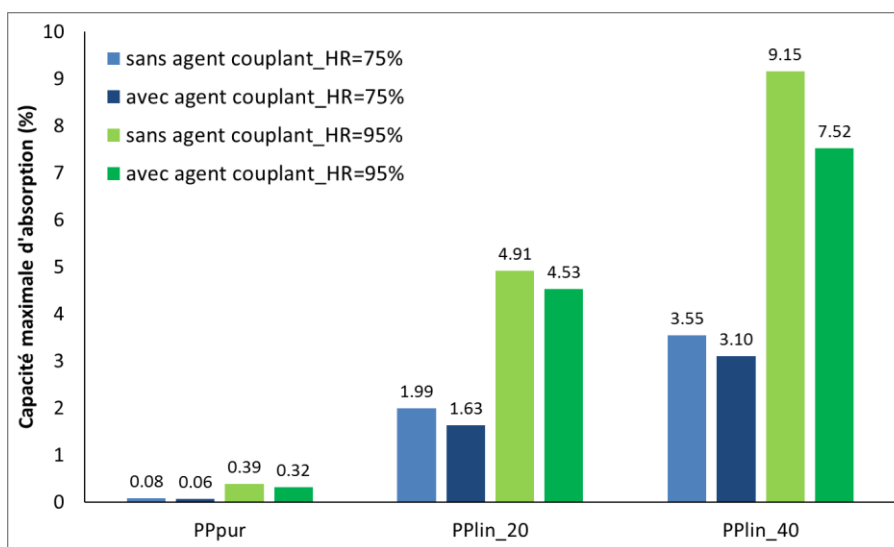


Fig. 4. Evolution de la capacité maximale d'absorption des éprouvettes en fonction de l'humidité relative

Ces résultats sont à mettre en relation avec les isothermes d'absorption des fibres de lin, qui montrent une augmentation significative de la capacité maximale d'absorption entre 70 et 95 % d'HR, comme le montre la figure 5 issue d'essais réalisés en DVS. L'isotherme de sorption des fibres de lin présente une allure sigmoïdale caractéristique de ce type de matériau [19-20]. Selon Bessadok et al. [21], cette allure témoigne de la coexistence de 3 modes de diffusion :

- I/ A des humidités relatives inférieures à 15 %, la teneur en eau à la saturation augmente faiblement avec l'augmentation de l'humidité relative environnementale. En effet, à de faibles humidités relatives, les molécules d'eau se fixent sur des sites spécifiques au sein des fibres (fonctions hydroxyles, ...),
- II/ Pour des humidités relatives entre 15 % et 70 % , avec l'augmentation de l'humidité relative, la rupture de certaines chaînes secondaires entraînerait la formation de canaux par lesquels l'eau s'infiltrerait facilement et en plus grande quantité,
- III/ A partir de 70 % d'humidité relative, la forte augmentation de la teneur en eau à ces fortes humidités relatives s'expliquerait par la formation de clusters de molécules d'eau.

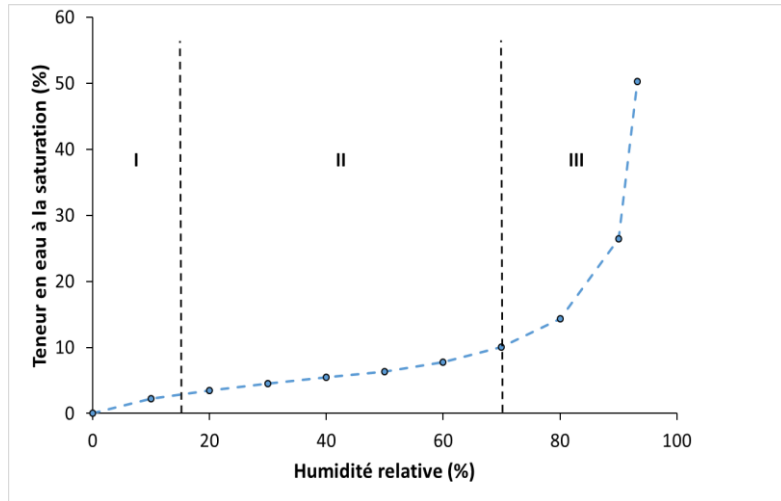


Fig. 5. Isotherme de sorption de fibres de lin

Après avoir obtenu les teneurs en eau à la saturation de tous les constituants aux humidités relatives étudiées, il est possible de prédire la diffusion d'eau dans le matériau composite à partir de méthodes de transitions d'échelles.

La cinétique de diffusion d'eau dans un matériau peut être modélisée par différentes lois. La plus utilisée est la loi de Fick, pilotée par deux paramètres de diffusion : le coefficient de diffusion  $D$ , qui traduit la vitesse de diffusion et la capacité maximale d'absorption d'eau  $M_{\infty}$ , correspondant à la teneur en eau maximale absorbée par le matériau. Différentes méthodes de transitions d'échelles sont présentées dans la littérature pour prédire les propriétés diffusives effectives des composites. D'après la littérature, la capacité maximale d'absorption d'humidité macroscopique du composite se détermine au moyen d'une loi des mélanges. En revanche la question de la prédiction des coefficients de diffusion par des méthodes de transitions d'échelles n'a pas encore été clairement élucidée, malgré un nombre de travaux relativement important [22-23-24].

Ainsi dans cette étude, nous nous sommes intéressés dans un premier temps à la prédiction de la capacité maximale d'absorption macroscopique d'un composite à partir des données expérimentales obtenues pour la capacité maximale d'absorption des constituants (fibres et résine). La capacité maximale d'absorption d'eau dans le composite a donc été étudiée en utilisant la loi des mélanges (Eq. 3).

$$M_{\infty-c} = v_f \times M_{\infty-f} + v_m \times M_{\infty-m} \quad (\text{Eq. 3})$$

Avec  $M_{\infty-c}$ ,  $M_{\infty-f}$  et  $M_{\infty-m}$  respectivement la teneur en humidité à saturation du composite, de la fibre et de la matrice.  $v_f$  et  $v_m$  représentent quant à elles les fractions volumiques de la fibre et de la matrice. Pour les composites avec et sans agent couplant,  $M_{\infty-m}$  sera égale à la teneur en eau à la saturation obtenue respectivement pour le PPgMa et le PP pur, à l'humidité relative étudiée.

Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 2 ci-dessous.

Type de matériaux	Teneurs en eau à la saturation (%)			
	75 % RH		95 % RH	
	Experimentale	Loi des mélanges	Experimentale	Loi des mélanges
PP	0,08		0,39	
PPgMa	0,06		0,32	
Fibres de lin	9,33		42,19	
PPlin_20	1,99	1,93	4,91	8,75
PPlin_40	3,55	3,78	9,15	17,11
PPgMalin_20	1,63	1,91	4,53	8,69
PPgMalin_40	3,10	3,77	7,52	17,07

Tab. 2. Différence entre teneurs en eau à la saturation obtenues expérimentalement et d'après la loi des mélanges

En comparant les teneurs en eau atteintes expérimentalement par les composites et celles prédites par la loi des mélanges classique, on a pu remarquer que dans des environnements humides sévères (dans ce cas, 95 % d'humidité relative), les valeurs prédites par la loi des mélanges surestiment la teneur en eau à saturation réellement absorbée. Ces différences entre les résultats expérimentaux et ceux calculés sont inattendues car cette loi des mélanges est généralement satisfaisante, du moins lorsqu'elle est appliquée à des composites renforcés par des fibres synthétiques [25-26]. En fait, cette différence peut s'expliquer par le fait que la matrice exerce un effet de confinement important sur les fibres, ce qui réduit la capacité maximale d'absorption des fibres de lin une fois qu'elles sont incluses dans la matrice polymère. Comme cet écart à la loi des mélanges est observé pour des fortes humidités relatives, il est possible que les clusters formés dans cette gamme d'humidité relative soient de plus petite taille dû à l'effet de confinement induit par la matrice. Une autre hypothèse envisageable pour expliquer ce couplage hygro-mécanique est que l'état de contrainte généré par le gonflement contrarié des fibres provoque une modification du comportement diffusif des fibres par rapport à leur comportement lorsqu'elles sont libres de contraintes.

Il est important de noter que les teneurs en eau expérimentales obtenues pour les composites à 75 % d'humidité relative sont voisines de celles obtenues en utilisant la loi des mélanges. Cette légère différence est considérée minime par rapport à celle observée pour les composites à 95 % d'humidité relative. Cela peut être dû à la teneur en eau à la saturation relativement faible pour ces matériaux à 75 % d'humidité relative. Ainsi, la teneur en eau dans les fibres végétales est suffisamment faible pour qu'il ne soit pas nécessaire de faire intervenir des clusters de grande taille. Par conséquent, l'effet de confinement exercé par la matrice sur les fibres n'affecte pas significativement le comportement diffusif des fibres végétales incluses dans le composite par comparaison avec celui des fibres seules.

#### 4. Conclusion

L'objectif de cette étude était de mieux comprendre le phénomène d'absorption de l'humidité au sein des composites polypropylène/fibres de lin, renforcés par différentes fractions volumiques de lin, avec et sans agent couplant. Les matériaux ont été mis au vieillissement humide à deux conditions d'humidité relative différentes.



Dans le cadre de cette étude, il a été prouvé qu'un effet de confinement des fibres par la matrice a lieu une fois nos matériaux mis en condition de vieillissement humide. En effet, l'effet de confinement dépend principalement de l'état de l'interface fibres/matrice et du gonflement hygroscopique des fibres lorsqu'elles sont incorporées dans la matrice, qui lui dépend de la teneur en eau présente dans le matériau à chaque instant. Si l'interface est mauvaise, il est possible d'imaginer que le transfert des efforts ne se fasse pas convenablement entre les constituants (entre la matrice qui entoure les fibres, et les fibres elles-mêmes). Dans ce cas, les contraintes de compression qui tendent à limiter le gonflement hygroscopique des fibres végétales ne seraient pas totalement transmises en absence d'agent couplant. Cela expliquerait pourquoi la reprise en eau serait plus faible dans les composites avec agent couplant. L'agent couplant assurerait un transfert des efforts optimal entre la matrice et les fibres, qui subiraient de plus grands efforts de compression qu'en absence d'agent couplant. Ces efforts de compression viendraient s'opposer au gonflement hygroscopique naturel des fibres isolées. Par conséquent, la taille maximale optimale des clusters de molécules d'eau à haute humidité relative serait plus faible dans les composites avec agent couplant, ce qui expliquerait la moindre capacité d'absorption d'humidité de ces composites par comparaison avec ceux dépourvus d'agent couplant. Les résultats obtenus prouvent alors que la loi des mélanges n'est pas fiable dans les applications sur des bio-composites exposés à des environnements humides extrêmes impliquant un couplage hygro-mécanique fort.

De plus, pour un taux de fibre constant dans un matériau donné, la teneur en eau absorbée augmente avec l'augmentation de l'humidité relative environnementale. Cette augmentation non linéaire de la teneur en eau à la saturation avec l'augmentation de l'humidité relative peut être due à des mécanismes qui pourront se produire préférentiellement à des humidités relatives sévères. Les essais réalisés en DVS à l'échelle des fibres montrent qu'une telle augmentation est également observée à partir d'une humidité relative de 70 %.

## Remerciements

Cette étude a été financée par une bourse du programme CEDRE, Partenariat Hubert Curien (PHC) franco-libanais.

## Références

- [1] A. Céline, S. Fréour, F. Jacquemin, P. Casari, « Characterization and Modeling of the Moisture Diffusion Behavior of Natural Fibers », *Journal of Applied Polymer Science*. Vol. 130, pp. 297-306, 2013.
- [2] V. Placet, O. Cisse et L. Boubakar, « Influence of environmental relative humidity on the tensile and rotational behavior of hemp fibres », *Journal of Material Science*. Vol. 47, pp. 3435-3446, 2012.
- [3] F. Jacquemin, S. Fréour et R. Guillén, « A Hygro-Elastic Self-Consistent Model for Fiber-Reinforced Composites », *Journal of Reinforced Plastics and Composites*. Vol. 24, pp. 485-502, 2005.
- [4] A. Le Duigou, P. Davies et C. Baley, « Seawater ageing of flax/poly (lactic acid) biocomposites », *Polymer Degradation and Stability*. Vol. 94, pp. 1151-1162, 2009.
- [5] MM. Thwe et K. Liao, « Durability of bamboo-glass fiber reinforced polymer matrix hybrid composites », *Composites Science and Technology*. Vol. 63, pp. 375-387, 2003.
- [6] A. Arbelaz, B. Fernandez, J.A. Ramos, A. Retegi, R. Llano-Ponte et I. Mondragon, « Mechanical properties of short flax fibre bundle/polypropylene composites : Influence of matrix/fibre modification, fibre content, water uptake and recycling », *Composites Science and Technology*. Vol. 65, pp. 1582-1592, 2005.
- [7] B. Wielage, T. Lampke, H. Mueller et S. Spange, « Processing and properties of natural fiber reinforced semi-finished polymers », *Journal of Advanced Science*. Vol. 13, pp. 137-141, 2001.
- [8] C. Joly, M. Kofman et R. Gauthier, « Polypropylene/cellulosic fiber composites: chemical treatment of the cellulose assuming compatibilization between the two materials », *Journal of Macromolecular Science, Part A: Pure and Applied Chemistry*. Vol. 33, pp. 1981-1996, 1996.
- [9] R. Gauthier, C. Joly, AC. Coupas, H. Gauthier et M. Escoubes, « Interfaces in polyolefin/cellulosic fiber composites: chemical coupling, morphology, correlation with adhesion and aging in moisture », *Polymer Composites*. Vol. 19, pp. 287-300, 1998.

- [10] AK. Rana, A. Mandal, BC. Mitra, R. Jacobson, R. Rowell et AN. Banerjee, « Short jute fiber-reinforced polypropylene composites: effect of compatibilizer », *Journal of Applied Polymer Science*. Vol. 69, pp. 329-338, 1998.
- [11] C.P.L. Chow, X.S. Xing et R.K.Y. Li, « Moisture absorption studies of sisal fibre reinforced polypropylene composites », *Composites Science and Technology*. Vol. 67, pp. 306-313, 2007.
- [12] H.N. Dhakal, Z.Y. Zhang et M.O.W. Richardson, « Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites », *Composites Science and Technology*. Vol. 67, pp. 1674-1683, 2007.
- [13] W. Qiu, F. Zhang, T. Endo et T. Hirotsu, « Preparation and characteristics of composites of high-crystalline cellulose with polypropylene: effects of maleated polypropylene and cellulose content », *Journal of Applied Polymer Science*. Vol. 87, pp. 337-345, 2003.
- [14] NE. Marcovich, MM. Reboredo et MI. Aranguren, « Moisture diffusion in polyester-woodflour composites », *Polymer*. Vol. 40, pp. 7313-7320, 1999.
- [15] T. Peijs, HGH. Van Melick, SK. Garkhail, GT. Pott et CA. Baillie, « Natural-fibre mat reinforced thermoplastics based on upgraded flax fibres for improved moisture resistance », in: 8<sup>th</sup> European Conference on Composite Materials, Naples, pp. 119-126, 1998.
- [16] KR. Harikumar, K. Joseph et S. Thomas, « Jute sack cloth reinforced polypropylene composites: mechanical and sorption studies », *Journal of Reinforced Plastics and Composites*. Vol. 18, pp. 346-372, 1999.
- [17] J. George, S.S. Bhagawan et S. Thomas, « Effect of environment on the properties of low-density polyethylene composites reinforced with pineapple leaf fibres », *Composites Science and Technology*. Vol. 58, pp. 1471-1485, 1998.
- [18] A. Stamboulis, C.A. Baillie et T. Peijs, « Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers », *Composites: Part A*. Vol. 32, pp. 1105-1115, 2001.
- [19] F. Gouanvé, S. Marais, A. Bessadok, D. Langevin et M. Métayer, « Kinetics of water sorption in flax and PET fibers », *European Polymer Journal*. Vol. 43, pp. 586-598, 2007.
- [20] S. Alix, E. Philippe, A. Bessadok, L. Lebrun, C. Morvan et S. Marais, « Effect of chemical treatments on water sorption and mechanical properties of flax fibres », *Bioresource Technology*. Vol. 100, pp. 4742-4749, 2009.
- [21] A. Bessadok, S. Marais, F. Gouanvé, L. Colasse, I. Zimmerlin, S. Roudesli et M. Métayer, « Effect of chemical treatments of Alfa (*Stipatenacissima*) fibres on water-sorption properties », *Composites Science and Technology*. Vol. 67, pp. 685-697, 2007.
- [22] C.-H. Shen et G.S. Springer, « Moisture Absorption and Desorption of Composite Materials », *Journal of Composite Materials*. Vol. 10, No.1, pp. 2-20, 1976.
- [23] M. Woo et M.R. Piggott, « Water absorption of resins and composites. IV: Water transport in fiber reinforced plastics », *Journal of composites technology & research*. Vol. 10, No.1, pp. 20-24, 1988.
- [24] H. Ramezani Dana, A. Perronnet, S. Fréour, P. Casari et F. Jacquemin, « Identification of moisture diffusion parameters in organic matrix composites », *Journal of Composite Materials*. Vol. 47, No.9, pp. 1081-1092, 2013.
- [25] H. Obeid « Durabilité de composites à matrice thermoplastique sous chargement hygro-mécanique : étude multi-physique et multi-échelle des relations microstructure– propriétés– états mécanique », Ph.D. thesis, Université de Nantes, 2016.
- [26] H. Ramezani Dana « Etude expérimentale et numérique du vieillissement hygroscopique de composites à matrice organique instrumentés par capteurs à réseaux de Bragg », Ph.D. thesis, Université de Nantes, 2012.