Comportement hygromécanique des biocomposites non-tissés soumis à des variations d'humidité

Hygro-mechanical behaviour of non-woven biocomposites with moisture variations

Victor Gager^{1,2}, Antoine Le Duigou², Alain Bourmaud², Floran Pierre³, Karim Behlouli¹, Christophe Baley²

l : Eco-technilin SAS ZA Caux Multipôles, RD 6015, 76190 Valliquerville e-mail : victor.gager@univ-ubs.fr

> 2 : Université de Bretagne Sud UMR CNRS 6027, IRDL Rue Saint Maudé, F- 56100 Lorient

3 : LINEO ZA Caux Multipôles, 76190 Valliquerville, France

Résumé

Ce travail a pour objectif d'étudier l'évolution des propriétés hygromécaniques des composites non-tissés lin/PP dans une large gamme d'humidité relative allant de 10 à 98% RH. L'influence de la microstructure sur le comportement hygroscopique et mécanique est étudiée avec des taux de porosité variables ($\Phi = 5$, 30, 50%). La porosité a un impact important sur la cinétique de sorption avec une saturation en humidité variant de 9 heures à 15 jours avec moins de porosité. En traction, le comportement et les propriétés mécaniques sont légèrement modifiés sur une plage de 10-75% HR mais ont un impact négatif entre 75% et 98% RH. Il est intéressant de noter que, contrairement au module tangent de traction et à la déformation à la rupture des composites lin/PP, la contrainte maximale augmente dans un premier temps avant de se stabiliser pour de forts taux d'humidités. Ceci s'explique par l'importance des contraintes de compression à l'interface fibre/matrice induites par l'hygroexpansion des fibres de lin. En flexion, on observe une diminution quasimontone des propriétés avec l'augmentation de la teneur en eau dans le matériau.

Abstract

This study investigates the evolution of hygromechanical properties of flax/PP nonwoven composites in a wide range of environmental Relative Humidity conditions from 10 to 98% RH. The influence of microstructure with various porosity content ($\Phi = 5$, 30, 50%) on the mechanical and hygroscopic behaviours is studied. The porosity greatly impacts the kinetic of sorption with moisture saturation varying from 9 hours to 15 days with decreasing voids. Tensile behaviour and properties are slightly changed over a range of 10-75% RH but negatively impacted between 75% and 98% RH. Interestingly, unlike the tangent tensile modulus and strain at rupture of flax/PP composites, the yield strength increases until 50% RH and stabilizes over this point; compressive stresses at the fibre/matrix interface induced by flax fibres hygroexpansion are proposed to explain this trend. A quasi-monotonous decrease is also observed in bending properties with the increase in water content in the material.

Mots Clés : Biocomposites, Non-tissés, Fibres de lin, Humidité, Propriétés mécaniques. **Keywords:** Biocomposites, Nonwovens, Flax fibres, Moisture, Mechanical properties

1. Introduction

Si les composites renforcés par des fibres végétales extrudés ou injectés sont largement utilisés dans l'industrie automobile [1], [2], les non-tissés représentent également un marché important. Généralement constitués de fibres libériennes (lin, jute, kénaf, chanvre, etc.) et de polypropylène, ils sont transformés par thermocompression pour être principalement utilisés dans la fabrication de pièces d'habillage intérieur automobile. Ces matériaux offrent une bonne déformabilité, des cycles de transformation courts ainsi qu'un coût de matière première limité. Ils permettent également une bonne recyclabilité et garantissent aux matériaux une combinaison intéressante de propriétés acoustiques et mécaniques [3]–[5]. À partir d'un même semi-produit, il est possible de contrôler la porosité au sein du matériau (de 5 à 60%) en modifiant le taux de compression durant le process et ainsi couvrir une large gamme d'applications. Une porosité élevée (60%) est idéale pour assurer de bonnes propriétés acoustiques grâce à un réseau de porosité qui tend à disperser et atténuer les ondes acoustiques [6]. D'un point de vue mécanique, il y a une dégradation des propriétés avec l'augmentation de la porosité.

Dans l'industrie automobile, les matériaux doivent non seulement conférer des propriétés acoustiques et mécaniques, mais aussi être durables pendant toute la durée de vie du véhicule (en tenant compte des variations de température et d'humidité). Certains travaux ont mis en évidence les variations de température à l'intérieur des véhicules pour différentes conditions météorologiques et différents lieux. À Athènes (Grèce) par exemple, la température maximale mesurée à l'intérieur des véhicules entre avril et août 2007 a varié entre 41°C et 76°C (Grundstein et al., 2009), tandis que pendant la période estivale en Australie occidentale, la température intérieure des voitures en stationnement variait entre 15°C et 70°C selon l'heure du jour, la couleur et l'orientation (Dadour et al., 2011) du véhicule. Ces dernières études montrent que les températures à l'intérieur du véhicule peuvent être supérieures de plus de 20°C à la température ambiante. A l'inverse, une température intérieure de 1°C a été enregistrée en République tchèque en janvier (Fišer et al., 2012). De plus, ces fortes variations de température sont indéniablement couplées à des variations d'humidité.

Même si les composites non-tissés renforcés par des fibres végétales sont suffisamment performants pour concurrencer ceux renforcés par des fibres de verre, leur sensibilité aux fortes variations de températures et d'humidité peut limiter leur utilisation, notamment lorsque des fonctions mécaniques sont requises. Ce phénomène constitue un frein majeur dans le développement de produits innovants et doit donc être étudié et compris afin de palier à ce problème.

Ce problème est assez complexe en raison du couplage des phénomènes thermiques, hygroscopiques et mécaniques. Pour mieux comprendre les phénomènes en cause, il faut découpler les comportements thermiques et hygroscopiques des matériaux. Afin de caractériser le comportement hygromécanique des matériaux, différents tests peuvent être mis en place en environnement humide ainsi qu'en immersion. Ainsi, la stabilité dimensionnelle ainsi que les propriétés mécaniques (traction et en flexion peuvent être déterminées après un conditionnement des composites et apporter des informations sur l'influence de l'humidité. Ces dernières années ont également vu naitre des essais complémentaires permettant de mettre en avant les contraintes résiduelles grâce à l'utilisation de stratifiés à empilement asymétrique 0/90° qui, soumis à une variation d'humidité, montre l'apparition de contraintes hygroscopiques qui se traduisent par une courbure du matériau [7]–[9].

Cet article se concentre sur l'effet de la variation du taux d'humidité sur le comportement hygromécanique des composites non-tissés à une température constante. Dans cette étude, nous étudions l'effet de la microstructure induite par la porosité. Ainsi, le comportement mécanique et les propriétés des composites non-tissés sont étudiés en traction et en flexion sur une plage représentative de cinq teneurs en humidité. Ces résultats sont combinés à des observations au microscope électronique à balayage ainsi que des essais sur composites asymétriques mettant en avant les contraintes résiduelles hygroscopiques.

2. Matériaux et méthodes

2.1 Matériaux utilisés

Des filasses de lin (*Linum usitatissimum L.*) de la variété Eden ont été utilisées dans cette étude. Cultivé en Normandie, roui au champ avant d'être teillé mécaniquement. Ces fibres ont été utilisées comme renfort dans le non-tissé et combinées avec du polypropylène brut (PP). Les non-tissés ont été fabriqués par la technologie de cardage-nappage-aiguilletage (Russell, 2007) par Eco-Technilin SAS (Normandie, France). Les produits ont une masse surfacique de 300 ± 30 g/m² avec un taux massique de renfort de l'ordre de 50%, conformément aux exigences industrielles.

2.2 Fabrication des composites

Les non-tissés ont été transformés par thermocompression avec une presse hydraulique (*LabTech Scientific 50T*) afin d'obtenir des plaques de 20 x 20 cm². L'épaisseur de la plaque a été fixée à 2 mm grâce à l'utilisation de cales. Par souci de cohérence avec les procédés de transformation industriels, les préformes n'ont pas été séchées avant transformation. Les plis superposés ont été pressés à chaud à 200°C et 20 bars pendant 4 minutes avant d'être refroidis à 50 bars pendant 3 minutes supplémentaires. Pour obtenir différents taux de porosité, la quantité de plis de non-tissés dans le moule a été ajustée (de 2 à 8 plis). Cependant, même si le taux de porosité peut être contrôlé, il est difficile de contrôler l'emplacement, la forme et la distribution de la taille des porosités [6].

2.3 Détermination de la porosité

Trois taux de porosité ont été ciblés : 5, 30 et 50%. Ces derniers ont été contrôlés conformément à la norme ASTM D2734-09. Le poids et les dimensions des plaques ont été mesurés afin de déterminer le taux de porosité à l'aide de l'équation suivante :

$$\Phi = 1 - \rho_c ((1 - w_f) / \rho_m + w_f / \rho_f)$$
(1)

Où Φ est la porosité, ρ_c , ρ_m and ρ_f sont les densités du composite, de la matrice et des fibres, respectivement, et w_f est le taux massique de fibres. Au préalable, les densités des fibres de renfort et de polypropylène ont été déterminées par la méthode de pesée dans l'air et dans l'éthanol selon la norme ISO 1183-1. Ces taux de porosité sont confirmés par des images de microscopie électronique à balayage.

2.4 Conditionnement des composites

Les composites ont été séchés dans une étuve à 105°C jusqu'à stabilisation de la masse pour éliminer le maximum d'eau libre et d'eau liée du matériau [10]. Des échantillons ont ensuite été placés dans des enceintes climatiques à humidité contrôlée à 23°C avec différents niveaux d'humidité relative (10, 33, 50, 75 et 98% HR). Différentes solutions salines saturées ont été utilisées pour maintenir une humidité relative constante dans chaque enceinte climatique [11].

2.5 Mesures de sorption

Pour les 5 valeurs d'humidité relative, les échantillons ont été pesés directement après séchage et placés dans les enceintes climatiques. Les variations de masse ont été vérifiées jusqu'à saturation afin de s'assurer de l'état stationnaire des matériaux.

Des mesures gravimétriques ont été effectuées pour suivre l'absorption d'humidité des biocomposites au cours du temps. Pour ce faire, cinq échantillons de chaque taux de porosité ont été placés dans une chambre climatique (Memmert) à 90% HR et 23°C. Le suivi de l'évolution de leur masse a d'abord été effectué toutes les heures, puis l'intervalle de temps a été progressivement augmenté jusqu'à 1 jour en fonction de la vitesse d'absorption d'eau des échantillons.

La prise de masse Mf est calculée comme suit :

$$M_f = \frac{w_s - w_0}{w_0} \times 100$$
 (2)

Où W_s et W_0 sont respectivement la masse de l'échantillon après stabilisation et la masse du matériau à l'état sec. Une balance scientifique de haute précision *FisherbrandTM* d'une précision de 10⁻⁴g a été utilisée pour les mesures.

2.6 Caractérisation des propriétés mécaniques

Des essais de traction statique ont été réalisés sur les matériaux à l'aide d'une machine d'essai INSTRON 5566A équipée d'un capteur de force de 10 kN et d'un extensomètre INSTRON d'une longueur nominale de 25mm. Les essais ont été réalisés sur des éprouvettes en forme « haltère » en atmosphère contrôlée (23°C et HR 50%), selon la norme ISO 527. Le module de traction a été calculé dans la partie linéaire de la courbe contrainte-déformation, au début de la charge entre 0,05 % et 0,1 % [12].

Des essais de flexion 3 points ont également été réalisés conformément à la norme ISO 14125 sur une machine d'essais MTS Synergie RT1000 avec une distance entre appuis de 32mm (dimensions des éprouvettes : $60 \times 15 \times 2$ mm). Pour tous les essais, au moins sept échantillons ont été testés avec une vitesse d'essai de 1 mm.min⁻¹.

2.7 Microscopie électronique à balayage

Des observations au microscope électronique à balayage ont été réalisées sur des coupes transversales de composites non-tissés. Les échantillons ont été recouverts d'une fine couche d'or par pulvérisation cathodique avec un métaliseur *Edwards* avant d'être analysés avec un *MEB Jeol JSM* 6460LV à 20 kV.

2.8 Évolution de l'état de contrainte

Des essais de suivi de courbure de biocomposites asymétriques ont été réalisés afin de suivre l'état de contrainte dans les matériaux en fonction de leur teneur en eau. Les biocomposites Lin/PP ont été réalisés par empilement de couches renfort-matrice avant d'être thermo-comprimés. L'étape de chauffe est réalisée en deux temps avec une première chauffe à 200°C pendant 2minutes à 20 bars, suivi d'un dégazage et d'une deuxième compression à 200°C pendant 4 minutes à 50 bars avant d'être refroidis à 100 bars pendant 3 minutes supplémentaires. Un nombre équivalent de couches passives et actives a été utilisé et un taux massique de fibres de 50% a été visé afin d'être en adéquation avec les composites non-tissés étudiés. Les éprouvettes ($80 \times 10 \times 0.75 \text{ mm}$) ont subi le même conditionnement que les composites non-tissés. La déformation est assimilée à un arc de cercle et la courbure (k) est calculée comme étant l'inverse du rayon de ce cercle.

3. Résultats et discussions

3.1 Sorption

Soumis à un environnement humide, les fibres végétales telles que le lin absorbent l'eau de par leur composition biochimique et leur structure, contribuant ainsi au comportement hydrophile du composite.

La figure 1.a. montre l'évolution de la teneur en eau de biocomposites non-tissés à différentes porosités en fonction du temps (23°C, 90% HR). La porosité joue un rôle important puisque l'on observe une vitesse d'équilibre nettement plus rapide pour des matériaux à porosité élevée : les composites non-tissés lin/PP avec une porosité de 5% n'atteignent la saturation en humidité qu'après 15 jours de conditionnement. Lorsque la porosité est faible, l'eau est d'abord absorbée par les surfaces et les chants, puis par le réseau de fibres. Avec l'augmentation de la porosité, les pores à l'intérieur du composite facilitent le transport de l'humidité [13] et il ne faut que 18 et 9 heures pour atteindre l'équilibre pour des porosités respectives de 30 et 50%.



Fig. 1. Absorption d'humidité des composites non-tissés lin/PP avec 5, 30 et 50% de porosité en fonction de la racine carrée du temps à 23°C et 90% d'humidité relative a). Isothermes de sorption des composites non-tissés lin/PP avec une porosité de 5, 30 et 50% (Φ) b). Les courbes sont obtenues en ajustant les valeurs expérimentales à un modèle sigmoïdal.

La figure 1.b représente les isothermes de sorption à 23°C des biocomposites non-tissés étudiés. Ces derniers présentent des courbes de forme sigmoïde, typique des matériaux cellulosiques et poreux [14]. Une légère différence d'absorption d'humidité en fonction de la porosité du matériau peut être notée. En effet, à 0,98 d'activité en eau, pour un faible taux de porosité ($\Phi = 5\%$), l'absorption d'humidité saturée est d'environ $8,0 \pm 0,1\%$ et augmente avec la hausse de la porosité pour atteindre $9,4 \pm 0,2$ et $9,5 \pm 0,1\%$ de teneur en eau pour des porosités respectives de 30 et 50%. Cela peut être expliqué par le fait qu'avec l'augmentation de la porosité, les fibres sont moins imprégnées par la matrice, ce qui leur permet d'être plus accessibles à l'eau. Des coupes transversales des matériaux observés au microscope électronique sont représentées sur la figure 2. Les images montrent qu'à faible niveau de porosité ($\Phi = 5\%$), les pores se situent principalement dans la matrice et à l'interface fibre/matrice. En augmentant le taux de porosité à 30%, les pores sont plus grands et situés autour des faisceaux de fibres, même s'ils ne semblent pas être reliés entre eux. À $\Phi = 50\%$, la dimension et le nombre de pores augmentent davantage et commencent potentiellement à s'interconnecter, créant un réseau tortueux de porosités [6].



Fig. 2. Images MEB des coupes transversales des composites fabriqués avec différentes porosités- a) $\Phi = 5 \%$; b) $\Phi = 30 \%$; c) $\Phi = 50 \%$. Les cercles rouges représentent la porosité matricielle et les cercles bleus la porosité interfaciale fibre/matrice.

3.2 Évolution des propriétés mécaniques

Les propriétés des matériaux sont directement impactées par leur absorption en eau. L'évolution du module tangent et de la contrainte maximale en traction en fonction de la teneur en eau sont respectivement représentées sur la figure 3.a. et 3.b. Les composites lin/PP présentent des variations significatives, en particulier pour le module tangent et la déformation. Pour les trois taux de porosité testés dans cette étude, les tendances sont similaires pour toutes les microstructures. Le module tangent diminue progressivement avec la teneur en eau et diminue d'un facteur deux sur la plage étudiée, sauf pour une porosité de 5% où il atteint une valeur maximale à une teneur en eau de 1,6%. Ces variations sont dues à l'évolution des propriétés des fibres végétales causé par la plastification du réseau cellulosique. À ce phénomène s'ajoute la plastification des lamelles mitoyennes provoquée par les interactions entre l'eau et les groupement hydroxyles à la surface de la fibre. Cela permet aux chaines amorphes de cellulose de se mouvoir plus librement, entrainant une perte de rigidité des fibres végétales [15]. Des variations similaires ont été décrites dans la littérature pour des fibres de lin [16] ainsi que pour des composites unidirectionnels renforcés par des fibres de lin et chanvre [17], [18]. Cela dit pour les composites non-tissés, toutes les fibres ne sont pas sollicitées dans leur longueur comme c'est le cas pour des composites unidirectionnels et d'autres phénomènes peuvent s'ajouter à l'évolution de la rigidité des fibres tels qu'une décohésion à l'interface fibre/matrice, et un glissement/réarrangement du réseau fibreux.



Fig. 3. Évolution du module de traction a) et contrainte maximale en traction b) en fonction de la teneur en eau dans le matériau pour les composites lin/PP avec une porosité 5, 30 et 50%. Représentation schématique de l'évolution de la déformation des biocomposites bilames conditionnés à différentes humidités relatives c). Influence de la teneur en eau sur la courbure des biocomposites bilames, la courbe est obtenue en ajustant les valeurs expérimentales à un modèle sigmoïdal d). Pour les figures c et d, un code couleur relie l'humidité relative avec la teneur en eau dans le matériau.

La contrainte maximale, au contraire, n'est pas beaucoup influencée par la variation de la teneur en eau du matériau. Elle augmente jusqu'à une teneur en eau d'environ 3%, et tend à se stabiliser au-delà de ce point. Des études antérieures sur des fibres de lin et de chanvre ont montré que les fibres individuelles ont une résistance maximale à la traction entre 50 et 70 % d'humidité relative, mais qu'elle diminuait ensuite à des HR plus élevées [19]-[21]. Cependant, dans notre étude, la contrainte ne diminue pas à forte teneur en eau. À ce niveau, la baisse de résistance des fibres végétales pourrait être compensée par l'évolution de l'état de contrainte au sein du matériau composite. En effet, lorsqu'il est associé à une matrice polymère, le gonflement des fibres est réduit puisque la matrice joue un rôle contraignant qui crée des contraintes de compression radiale à l'interface fibre/matrice [22]. La figure 3.c. est une représentation graphique de l'évolution de la courbure des composites asymétriques pour les différentes humidités relatives testées. La courbure de ces matériaux est déclenchée par le gonflement des fibres végétales et le gonflement différentiel entre les couches. D'après la Figure 3.d. la courbure augmente en fonction de la teneur en eau, ce qui conduit à une augmentation des contraintes résiduelles hygroscopiques des fibres sur la matrice et donc à un meilleur transfert de charge au sein du matériau. Il est nécessaire de rappeler que la matrice utilisée ici est du polypropylène non greffé et que bien que les interactions à l'interface fibre/matrice soient faibles, les contraintes hygroscopiques sont assez importantes pour entrainer une courbure du matériau.

Bien qu'elle affecte les propriétés mécaniques initiales des composites non-tissés en traction, la porosité ne semble pas modifier leur évolution lorsque la teneur en eau augmente.



Fig. 4. Évolution du module de flexion a) et de la contrainte maximale b) en flexion en fonction de la teneur en eau dans le matériau pour les composites lin PP avec une porosité 5, 30 et 50%. Influence de la teneur en eau sur l'évolution des modules de traction c) et flexion d) en fonction de la déformation des composites non-tissés avec 5% de porosité.

En flexion, l'évolution des propriétés a une tendance différente de celle observée en traction. En effet, que ce soit pour le module ou la contrainte maximale, on observe une diminution quasimonotone avec l'augmentation de la teneur en eau. Lors d'une sollicitation en flexion, le matériau subi des contraintes de traction à l'intérieur de la fibre neutre et de compression à l'extérieur. Le comportement en traction ayant été décrit dans la section précédente, la différence d'évolution des propriétés entre traction et flexion en fonction de la teneur en eau est certainement liée au comportement en compression du matériau et des fibres végétales, reconnu comme étant moins performant qu'en traction [23].

La tenue en compression est influencée par le cisaillement interfacial entre fibre et matrice, or l'adhérence entre les fibres de lin et le polypropylène est relativement limitée en raison des faibles interactions présentes [24]. Des études récentes sur des systèmes microgouttes fibres de

chanvre/époxy ont montré une augmentation de l'IFSS (contrainte de cisaillement interfacial) jusqu'à 50% d'humidité relative suivie par une diminution au-delà [25]. Ce phénomène pourrait être transféré à l'échelle du matériau puisque l'on peut voir que la contrainte maximale représentée sur la Figure 4.b. est relativement stable jusqu'à 3% de teneur en eau (50% HR), avant de chuter pour de plus hautes teneurs en eau. En plus de l'IFSS, l'endommagement en compression menant à une rupture est généralement dû au micro-flambement des fibres provoqué par des zones pré-endommagées couplé à une désorientation des fibres [26]. Avec une mobilité des fibres facilitée par la teneur en eau dans le matériau, il est possible que le phénomène de flambement soit accentué, provoquant une baisse de la contrainte maximale.

Contrairement à la traction, la porosité semble avoir un impact sur l'évolution des propriétés des composites non-tissés lin/PP en flexion. Ainsi, entre 10% et 98% d'humidité relative, le module subit une chute de 103, 109 et 141% pour $\phi = 5$, 30 et 50%, respectivement. Le même phénomène est observé pour la contrainte maximale avec une diminution de 19 à 40% lorsque la porosité augmente. Physiquement, Les pores sont à l'origine de concentrations de contraintes dans la matrice, entraînant un déchaussement prématuré et une perte continue de stabilité de la fibre provoquant finalement une dislocation et la création de genoux [27]. Avec le gonflement induit par la sorption d'eau, les concentrations de contrainte peuvent être plus prononcées favorisant finalement une dégradation des propriétés du composite.

Le fait que la stabilité en flexion des biocomposites non-tissés varie selon leur densité est une piste intéressante pour le développement de matériaux à hautes performances puisque l'on peut imaginer concevoir des matériaux avec un gradient de porosité afin que la zone en compression soit plus dense et donc plus résistante.

4. Conclusion

Cette étude porte sur le comportement hygromécanique de biocomposites non-tissés Lin/PP avec différents taux de porosité (5, 30 et 50%). Les matériaux ont été conditionnés à cinq niveaux d'humidité relative différents (HR = 10, 33, 50, 75 et 98 %) et à une température constante de 23 °C jusqu'à stabilisation de leur teneur en eau.

La porosité a un impact important sur la cinétique de prise de masse des matériaux. Le temps nécessaire pour atteindre un taux d'humidité stabilisé varie de 9 heures à 15 jours, respectivement pour les porosités élevées et faibles. En revanche, à saturation, on remarque uniquement une légère différence d'absorption d'humidité en fonction de la porosité.

Une hausse de la rigidité et une baisse de la déformation à la contrainte maximale apparaît à HR élevée (98 %) ; Cela est attribué aux variations des propriétés mécaniques des fibres de lin ellesmêmes ainsi qu'au glissement du réseau de fibres. Il est intéressant de noter que la contrainte maximale augmente dans un premier temps avant de se stabiliser au-dessus de 50% HR. Bien que la porosité ait un impact direct sur les propriétés de traction et le comportement des composites, elle n'a aucune influence sur leur évolution avec l'augmentation du taux d'humidité.

Contrairement à la traction, on observe une évolution quasi-monotone des propriétés en flexion avec l'augmentation de la teneur en eau. La rigidité ainsi que la résistance des composites non-tissé lin/PP a tendance à chuter tandis que la capacité de déformation augmente ; la faible tenue en compression des fibres végétales peut être considérée comme une des raisons principales de cette évolution de propriétés en environnement humide. Par ailleurs, l'augmentation du taux de porosité semble avoir une influence négative sur les propriétés en flexion.

À travers différentes analyses, cette étude permet de mieux comprendre les différents phénomènes entrant en jeu dans l'évolution des propriétés hygromécaniques des composites non-tissés. À moyen terme, cela permettra de développer des matériaux biocomposites de haute performance ayant un comportement moins sensible aux environnements sévères.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier l'association nationale recherche et technologie pour le financement de la thèse cifre de Victor Gager.

Références

- [1] O. Faruk, "Cars from Jute and Other Bio-Fibers," Macromol. Mater. Eng., vol. 291, pp. 449–457, 2006.
- [2] G. Koronis, A. Silva, and M. Fontul, "Green composites: A review of adequate materials for automotive applications," *Compos. Part B Eng.*, vol. 44, no. 1, pp. 120–127, 2013.
- [3] A. Hao, H. Zhao, and J. Y. Chen, "Kenaf/polypropylene nonwoven composites: The influence of manufacturing conditions on mechanical, thermal, and acoustical performance," *Compos. Part B Eng.*, vol. 54, pp. 44–51, 2013.
- [4] H. L. Bos, J. Müssig, and M. J. A. van den Oever, "Mechanical properties of short-flax-fibre reinforced compounds," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 37, no. 10, pp. 1591–1604, 2006.
- [5] N. Renouard, J. Merotte, A. Kervoelen, K. Behlouli, C. Baley, and A. Bourmaud, "Exploring two innovative recycling ways for poly-(propylene)-flax non wovens wastes," *Polym. Degrad. Stab.*, 2017.
- [6] J. Merotte, A. Le Duigou, A. Bourmaud, K. Behlouli, and C. Baley, "Mechanical and acoustic behaviour of porosity controlled randomly dispersed flax/PP biocomposite," *Polym. Test.*, vol. 51, pp. 174–180, 2016.
- [7] A. Le Duigou, S. Requile, J. Beaugrand, F. Scarpa, and M. Castro, "Natural fibres actuators for smart bio-inspired hygromorph biocomposites," *Smart Mater. Struct.*, vol. 26, no. 12, p. 125009, Dec. 2017.
- [8] M. Péron, A. Célino, M. Castro, F. Jacquemin, and A. Le Duigou, "Study of hygroscopic stresses in asymmetric biocomposite laminates," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 169, pp. 7–15, 2019.
- [9] A. Le Duigou, V. Keryvin, J. Beaugrand, M. Pernes, F. Scarpa, and M. Castro, "Humidity responsive actuation of bioinspired hygromorph biocomposites (HBC) for adaptive structures," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 116, pp. 36–45, 2019.
- [10] C. Baley, A. Le Duigou, A. Bourmaud, and P. Davies, "Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 43, no. 8, pp. 1226–1233, 2012.
- [11] L. Greenspan, "Humidity Fixed Points of Binary Saturated Aqueous Solutions," J. Res. Natl. Bur. Stand. -A. Phys ics Chem., vol. 81, no. 1, 1977.
- [12] J. Merotte *et al.*, "Flax and hemp nonwoven composites: The contribution of interfacial bonding to improving tensile properties," *Polym. Test.*, vol. 66, no. December 2017, pp. 303–311, 2018.
- [13] L. A. Carlsson and E. Du, "Water Uptake in Polymer Composites with Voids," in *Durability of Composites in a Marine Environment 2*, P. Davies and Y. D. S. Rajapakse, Eds. Cham: Springer International Publishing, 2018, pp. 33–57.
- [14] S. Brunauer, L. S. Deming, W. E. Deming, and E. Teller, "On a Theory of the van der Waals Adsorption of Gases," J. Am. Chem. Soc., vol. 62, no. 7, pp. 1723–1732, 1940.
- [15] A. Stamboulis, C. A. Baillie, and T. Peijs, "Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 32, no. 8, pp. 1105–1115, 2001.
- [16] G. C. Davies and D. M. Bruce, "Effect of Environmental Relative Humidity and Damage on the Tensile Properties of Flax and Nettle Fibers," *Text. Res. J.*, vol. 68, no. 9, pp. 623–629, 1998.
- [17] A. Moudood, W. Hall, A. Öchsner, H. Li, A. Rahman, and G. Francucci, "Effect of Moisture in Flax Fibres on the Quality of their Composites," J. Nat. Fibers, vol. 00, no. 00, pp. 1–16, 2017.
- [18] S. Requile, A. Le Duigou, A. Bourmaud, and C. Baley, "Deeper insights into the moisture-induced hygroscopic and mechanical properties of hemp reinforced biocomposites," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, 2019.
- [19] B. Van Voorn, H. H. G. Smit, R. J. Sinke, and B. De Klerk, "Natural fibre reinforced sheet moulding compound," *Compos. - Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 32, no. 9, pp. 1271–1279, 2001.
- [20] V. Placet, O. Cisse, and M. L. Boubakar, "Influence of environmental relative humidity on the tensile and rotational behaviour of hemp fibres," *J. Mater. Sci.*, vol. 47, no. 7, pp. 3435–3446, 2011.
- [21] A. Thuault, S. Eve, D. Blond, J. Bréard, and M. Gomina, "Effects of the hygrothermal environment on the mechanical properties of flax fibres," *J. Compos. Mater.*, vol. 48, no. 14, pp. 1699–1707, Jun. 2014.
- [22] T. Joffre, E. L. G. Wernersson, A. Miettinen, C. L. Luengo Hendriks, and E. K. Gamstedt, "Swelling of cellulose fibres in composite materials: Constraint effects of the surrounding matrix," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 74, pp. 52–59, Jan. 2013.

- [23] A. W. Van Vuure, J. Baets, K. Wouters, and K. Hendrickx, "Compressive properties of natural fi bre composites," *Mater. Lett.*, vol. 149, pp. 138–140, 2015.
- [24] C. Baley, M. Lan, A. Bourmaud, and A. Le Duigou, "Compressive and tensile behaviour of unidirectional composites reinforced by natural fi bres : In fl uence of fi bres (fl ax and jute), matrix and fi bre volume fraction," *Mater. Today Commun.*, vol. 16, no. July, pp. 300–306, 2018.
- [25] S. Requile, A. Le Duigou, A. Bourmaud, and C. Baley, "Interfacial properties of hemp fiber/epoxy: effect of moisture sorption and induced hygroscopic stresses," *Under Rev.*
- [26] B. D. Garland, I. J. Beyerlein, and L. S. Schadler, "The development of compression damage zones in fibrous composites," vol. 61, pp. 2461–2480, 2001.
- [27] W. V. Liebig, C. Viets, K. Schulte, and B. Fiedler, "Influence of voids on the compressive failure behaviour of fibre-reinforced composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 117, pp. 225–233, 2015.