

## Détermination multi-échelle des coefficients de gonflement hygroscopique des composites lin/époxy et des fils de lin

### *Multiscale determination of the water-swelling coefficient of flax/epoxy composites and flax yarns*

Marwa ABIDA<sup>1</sup>, Florian GEHRING<sup>1</sup>, Jamel MARS<sup>2</sup>, Alexandre VIVET<sup>1</sup>, Fakhreddine DAMMAK<sup>2</sup>, Mohamed HADDAR<sup>3</sup>

1 : Laboratoire CIMAP  
UMR6252 ENSICAEN-UCN-CNRS-CEA  
IUT Alençon, 61250 Damigny  
e-mail : marwa.abida@unicaen.fr, florian.gehring@unicaen.fr et alexandre.vivet@unicaen.fr

2 : Unité de Recherche de Génie de Production Mécanique et Matériaux  
Ecole Nationale d'Ingénieurs de Sfax, ENIS  
Route Soukra Km 3.5, B.P 1173-3038 Sfax Tunisie 3  
e-mail : jamelmars@yahoo.fr et fakhreddine.dammak@enis.rnu.tn

3 : laboratoire de recherche de Mécanique, Modélisation et Productique  
Ecole Nationale d'Ingénieurs de Sfax, ENIS  
Route Soukra Km 3.5, B.P 1173-3038 Sfax Tunisie 3  
e-mail : mohamed.haddar@enis.rnu.tn

### Résumé

Parmi les modifications engendrées par l'absorption d'eau dans les matériaux, l'hygro-expansion est un paramètre clé pour décrire les couplages hygro-mécaniques dans les composites polymères renforcés par des fibres végétales. Cependant, peu d'étude expérimentale sont proposées par la littérature. Cette étude se propose donc de déterminer, dans une approche expérimentale multi-échelle, les coefficients d'hygro-expansion des fils de lin et des composites renforcés par des fibres de lin (CRFL). Les résultats montrent un coefficient de gonflement radial des fils de lin important et nettement supérieur à celui classiquement admis dans la littérature. De même, ce papier met en évidence que les dilatations hygroscopiques des CRFL sont fortement anisotropes. L'étude montre un comportement non-linéaire des dilatations hygroscopiques des composites dans la direction des fils de chaîne caractérisé par un coefficient d'hygro-expansion négatif. Les coefficients de dilatations transversaux du composite sont inférieurs à celui radial des fils de lin expliqués par l'effet bloquant de la matrice. De plus, les dilatations hygroscopiques dans la direction des fils de trame sont faibles. Ce résultat est expliqué par le coefficient d'hygro-expansion longitudinal des fils de trame négatif qui bloque les dilatations.

### Abstract

The absorption of water by flax fibers causes a dimensional change. Therefore, hygroscopic expansion is a key parameter to describe hygromechanical couplings in vegetable fiber-reinforced polymer composites. However, few experimental studies are proposed in literature. This paper proposes to determine, in a multi-scale experimental approach, the coefficients of hygroscopic expansion of flax yarns and flax fiber reinforced composites (FFRC). The results show a significant radial swelling coefficient of flax yarns higher than what is conventionally admitted in the literature. Moreover this paper shows that the hygroscopic expansions of FFRC are strongly anisotropic. The study shows a non-linear swelling behavior of composites in the direction of warp yarns characterized by a negative hygroscopic expansion coefficient. The transverse hygroscopic expansion coefficients of the composite are lower than flax yarn. This difference could be explained by effect of the matrix that prevents swelling. These differential expansions generate interfacial stresses. In addition, the hygroscopic expansion coefficient in the direction of the weft yarns is 10 times smaller than hygro-expansion coefficient in thickness direction. This result is explained by the negative longitudinal coefficient of hygroscopic expansion of weft yarns which blocks the swelling.

**Mots Clés :** composite polymère renforcé de fibres végétales, fils de lin, coefficients d'hygro-expansion  
**Keywords:** vegetal fiber reinforced polymer composite, flax yarn, hygroscopic expansion coefficients

## 1. Introduction

Les fibres de lin et les produits associés (fils de renfort, tissu et composite renforcé par des fibres de lin (CRFL)) sont caractérisés par une forte affinité aux molécules d'eau. La composition chimique et la structure des fibres de lin sont deux facteurs permettant d'expliquer leur hydrophilie. En effet, c'est la capacité des sites moléculaires du polymère et des fibres à établir des liaisons Hydrogène avec les molécules d'eau qui contrôle, en partie, le phénomène de diffusion [1]. De plus, l'absorption d'eau dans les fibres végétales peut se faire par des effets de capillarité, par le lumen par exemple [2,3].

Abida et al. [4] ont montré la forte influence de la teneur en eau sur le comportement des tissus de fils lin. Cette modification du comportement peut être expliquée par les modifications physiques et/ou chimiques au sein du renfort. Parmi ces modifications, l'absorption d'eau par les fibres de lin provoque un changement dimensionnel. Le rapport de la variation de longueur d'un échantillon à sa variation de masse (due à l'absorption d'eau) est défini comme le coefficient d'expansion hygroscopique (CEH), également connu comme le coefficient de gonflement  $\beta$ . Le Duigou et al. [5] ont montré que les contraintes résiduelles aux interfaces fibre/matrice étaient fortement influencées par les dilations hydriques et donc par ce coefficient  $\beta$ . Ainsi, la modélisation du comportement des CRFL avec prise en compte des couplages hygro-mécanique nécessite de déterminer ce coefficient.

Dans une approche expérimentale multi-échelle, ce papier présente une méthode directe de détermination des coefficients d'expansion hygroscopique des fils de lin et des composites renforcés par un tissu quasi-unidirectionnel de fils de lin. Dans un premier temps, ce papier présente les matériaux (renfort et matrice), les méthodes utilisées (élaboration et conditionnement) dans le cadre de cette étude. Les résultats des coefficients de gonflement hygro-expansion sont ensuite présentés et discutés.

## 2. Matériaux et méthodes

### 2.1 Matériaux

#### ➤ Renfort

Le matériau étudié est un tissu de fil de lin quasi unidirectionnel FUD 180 fourni par LINEO NV Company. L'abréviation « FUD » correspond à un renforcement «quasi unidirectionnel». Le nombre qui lui est associé est le grammage théorique des tissus. Ce renfort est donc caractérisé par une densité surfacique (ou grammage) théorique de  $180\text{g/m}^2$  (Fig.1).

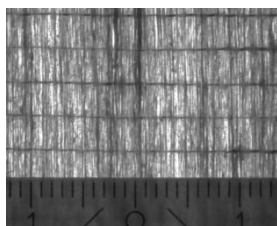


Fig. 1. tissu de fil de lin quasi-unidirectionnel FUD 180.

La présence d'un nombre limité de fils dans le sens trame a pour but de faciliter la manipulation du tissu. Ce tissu est donc caractérisé par coefficient d'équilibrage  $K_g$  de 0,93. Ce coefficient est défini comme le compte de fil dans le sens chaîne divisé par le compte total de fil (chaîne + trame). Un «taux de remplissage» de l'ordre de 94% a été calculé. Ce taux correspond à la projection orthogonale de la surface du tissu divisée par la surface totale. Il est déterminé théoriquement en utilisant la masse volumique du lin, le numéro métrique du fil et le compte de fil. Ce renfort de fils

de lin est ensimé avec de l'époxy ce qui, pour des raisons de compatibilité, explique le choix de la matrice.

### ➤ Matrice

La matrice utilisée pour l'élaboration des plaques en composite est un mélange de résine époxyde commercialisée sous le nom de Araldite LY 1564 et de durcisseur Aradur 3487 (Hunstman). La viscosité de la résine Araldite LY 1564 à température ambiante ( $T=25\text{ °C}$ ) est comprise entre 10 et 20mPa·s et sa densité est comprise entre 1,1 et 1,2g/cm<sup>3</sup>. La viscosité du durcisseur Aradur 3487 à  $T=25\text{ °C}$  est comprise entre 30 et 70mPa·s et sa densité est comprise entre 0,98 et 1g/cm<sup>3</sup>. Le mélange optimal proposé par le fabricant est de 34 parties pondérales de durcisseur pour 100 parties pondérales de résine. Cette résine a été développée et adaptée pour un moulage au contact. En raison de sa faible viscosité, l'imprégnation et l'adhésion fibre/matrice sont améliorées.

## 2.2 Elaboration

### ➤ Elaboration des stratifiés composites

Les plaques en composites tissus de lin / époxy (CRFL) ont été élaborées par moulage au contact dans un moule fermé avec drapage manuel de 8 plis (pli par pli) selon une stratification unidirectionnelle. Le renfort a été préalablement étuvé pendant une heure à 110°C pour chasser les molécules d'eau et faciliter l'imprégnation de résine.

Une phase de repos à température ambiante pendant 2 heures sous une pression de  $7,1 \pm 0,5$  bars permet d'assurer la pénétration et l'imprégnation de la résine au sein des plis. Selon les recommandations du fabricant, la cuisson du stratifié est réalisé à 100°C pendant 2h sous une pression de  $7,1 \pm 0,5$  bars.

Des éprouvettes carrées de dimensions 30×30 mm<sup>2</sup> et 70×70 mm<sup>2</sup> été découpées par découpe laser en ajustant les paramètres de coupe (vitesse et puissance) pour limiter les brûlures des faces.

### ➤ Extraction des renforts fils élémentaires

Les fils élémentaires ont été extraits aléatoirement dans tout le rouleau de tissu de lin. 3 longueurs utiles ont été sélectionnées (100 mm, 150 mm et 200 mm).

## 2.3 Conditionnement

L'utilisation de solutions aqueuses salines saturées, réalisées à partir de sels minéraux, dans une enceinte fermée à température constante permet de réguler l'atmosphère à humidité relative constante. Quatre enceintes à HR constante sont stockées dans une pièce régulée à  $T=20\text{ °C}$ . Le tableau (Tab. 1) représente les solutions aqueuses salines saturées utilisées et l'HR correspondante à chacune d'entre elles.

Solution aqueuse saline saturée	HR étudiée (20 °C)
Hydroxyde de Potassium	8 %
Carbonate de Potassium	45 %
Chlorure de Sodium	75 %
Sulfate de Potassium	97 %

Tab. 1. solutions aqueuses salines saturées utilisées et HR correspondante.

Les échantillons de fils et de composites lin/époxy, préalablement étuvés (pendant 24h à 103°C) jusqu'à évaporation complète de l'eau, sont conditionnés jusqu'à stabilisation de leur masse dans ces enceintes hermétiques à humidité relative contrôlée. Un suivi gravimétrique des composites et

des fils à intervalles de temps réguliers est réalisé afin de déterminer la teneur en eau absorbée au cours du temps ( $w_t$ ). La masse des échantillons a été mesurée avant le conditionnement ( $w_0$ ). La teneur en d'eau absorbée est alors calculée selon la norme ASTM D 570 et est estimée par la relation (Eq. 1) :

$$w(t) = \frac{w_t - w_0}{w_0} \quad (\text{Eq. 1})$$

#### 2.4 Mesure des déformations hydriques

Les variations dimensionnelles des fils et des composites sont mesurées à saturation.

Les diamètres apparents des fils de lin ont été mesurés par une méthode optique en utilisant un projecteur de profil couplé à une caméra numérique. Les sections des fils ont été considérées comme cylindriques et une mesure dans deux directions orthogonales permet de déterminer le diamètre apparent local des fils. Le diamètre moyen du fils est obtenu par la mesure du diamètre de 10 sections. Une mesure de ce diamètre avant conditionnement et après saturation permet de déterminer le gonflement radial des fils en fonction de la teneur en eau moyenne des fils.

Les variations de dimensions suivant les 3 directions des plaques CRFL sont également mesurées (longueur, largeur et épaisseur). Un minimum de 3 mesures est nécessaire pour obtenir la déformation hydrique moyenne suivant une direction.

La teneur en eau moyenne et les déformations hydriques moyennes pour chaque humidité relative ont été calculées à partir de 5 plaques de composites et de 30 fils de lin

### 3. Résultats et discussion

Les teneurs en eau à saturation des CRFL et des fils de lin ainsi que les temps nécessaires sont fournis dans le tableau (Tab.2).

HR de l'atmosphère ou liquide d'immersion	Fil élémentaire de lin		Composites CRFL	
	Teneur en eau à saturation	Temps pour saturation	Teneur en eau à saturation	Temps pour saturation
8 %	1,7 %	98 h	0,63 %	47 sem
45 %	4,6 %	50 h	2,4 %	38 sem
75 %	7,1 %	36 h	4,9 %	15 sem
97 %	10,9 %	21 h	10,5 %	10 sem
Immergés dans l'eau	-	-	14,4 %	7 sem

Tab. 2. Teneurs en eau des CRFL et des fils de lin en fonction de l'atmosphère de conditionnement.

Pour rappel, l'absorption d'eau par les fibres de lin est accompagnée par un gonflement radial, caractérisé par le coefficient d'expansion hygroscopique noté  $\beta_r$ . Peu de travaux dans la littérature s'intéressent à la détermination expérimentale de ce coefficient. Le Duigou et al. [5] ont mesuré ce coefficient sur des fibres de lin. Cependant, nos composites sont renforcés avec un tissu constitué de fils de lin. Les mécanismes de gonflement peuvent être différents (détorsion des fils, etc). Ainsi, la détermination du coefficient de gonflement des fils de lin est essentielle pour comprendre le gonflement des composites CRFL. L'évolution du gonflement radial en fonction de la teneur en eau est tracée sur la figure (Fig.2). Chaque point de la figure (Fig.2) correspond aux moyennes du gonflement radial et de la teneur en eau obtenues sur au minimum 30 fils, et les barres représentent les écart-types.

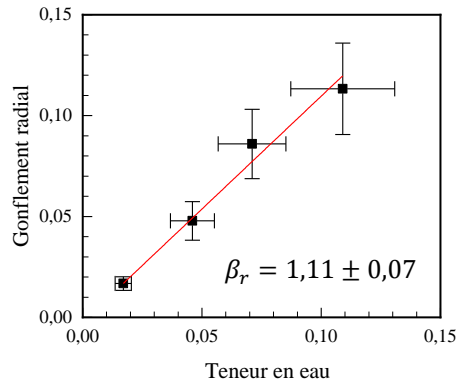


Fig. 2. Coefficient de gonflement radial des fils de lin.

La droite de régression linéaire permet d'évaluer le coefficient d'expansion hygroscopique. Pour les fils étudiés, un coefficient  $\beta_r = 1,11 \pm 0,07$  a été mesuré. Cette valeur est supérieure à celle classiquement admise dans la littérature ( $\beta_r = 0,6$ ) [6,7] et pratiquement égale à celle mesurée par Le Duigou et al. [5] sur les fibres lin ( $\beta_r = 1,14$ ). Le gonflement radial libre des fils de lin semble être similaire à celui des fibres élémentaires de lin.

Les déformations hydriques longitudinales (dans le sens des fils de lin) en fonction de la teneur en eau des CRFL sont tracées sur la figure (Fig. 3). En première approche, le coefficient de gonflement longitudinal des CRFL peut être considéré comme négatif. L'absorption d'eau du composite CRFL induit donc un rétrécissement dans le sens des fils. Une analyse plus approfondie met en évidence des effets non-linéaires. En effet, pour des teneurs en eau inférieure à 3 %, les déformations hydriques sont positives induisant un gonflement alors que pour les teneurs en eau supérieur à ce seuil, les déformations hydriques sont négatives engendrant un rétrécissement. Ce comportement particulier pourrait être expliqué par la microstructure de notre renfort. L'absorption d'eau par les fils de lin pourrait engendrer une détorsion des fils retordus engendrant ainsi leur allongement à faible teneur en eau. Lorsque la teneur en eau dépasse un certain seuil, ce phénomène pourrait être contrebalancé par d'autres expliquant que les déformations hydriques deviennent négatives à fortes teneurs en eau. Ainsi, le gonflement radial important des fibres de lin à forte teneur en eau pourrait engendrer leur rétrécissement longitudinal et par conséquent un rétrécissement du composite.

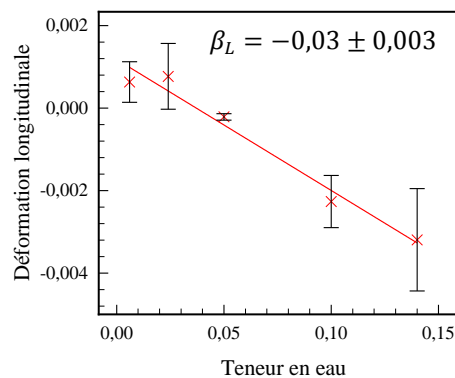


Fig. 3. Coefficient de gonflement longitudinal des CRFL.

Les gonflements transverses sont présentés sur la figure (Fig.4). Le coefficient de gonflement suivant l'épaisseur est  $\beta_{T'} = 0,89 \pm 0,05$  (Fig.4a). Cette valeur est inférieure à celle du gonflement radial trouvée pour les fils de lin ( $\beta_r = 1,11 \pm 0,07$ ). Cette différence peut être attribuée à la

présence de l'époxy qui joue le rôle de barrière qui bloque le gonflement des fils ( $\beta_{matrice} = 0,6$  [8,9]). Le gonflement des fils de lin dans le composite est donc inférieur à celui de fils de lin libre de se déformer. Ce gonflement différentiel entre les gonflements des fils et celui de la matrice induit l'apparition de contraintes interfaciales pouvant fragiliser l'interface renfort/matrice dans les CRFL.

De plus, un rapport de 10 a été mesuré entre les coefficients de gonflement transversaux. En effet, le gonflement dans la direction des fils de trame est très faible et le coefficient de gonflement est de  $\beta_T = 0,083 \pm 0,02$  (fig. 4b). Cette stabilité dimensionnelle peut être expliquée par la présence de quelques fils de trame qui bloquent le gonflement dans cette direction. En effet, le gonflement de la matrice et le gonflement radial des fils de chaîne devrait engendrer un gonflement dans le sens transverse. Cependant le comportement longitudinal, supposé, des fils de lin ( $\beta_L < 0$ ), contrebalance le gonflement radial et induit une stabilité dimensionnelle du composite dans la direction des fils de trame. Ce comportement pourrait également être à l'origine de contraintes internes.

Les mesures des coefficients de gonflement des CRFL, suivant les trois directions, mettent en évidence la forte anisotropie du comportement hygroscopiques de ces composites.

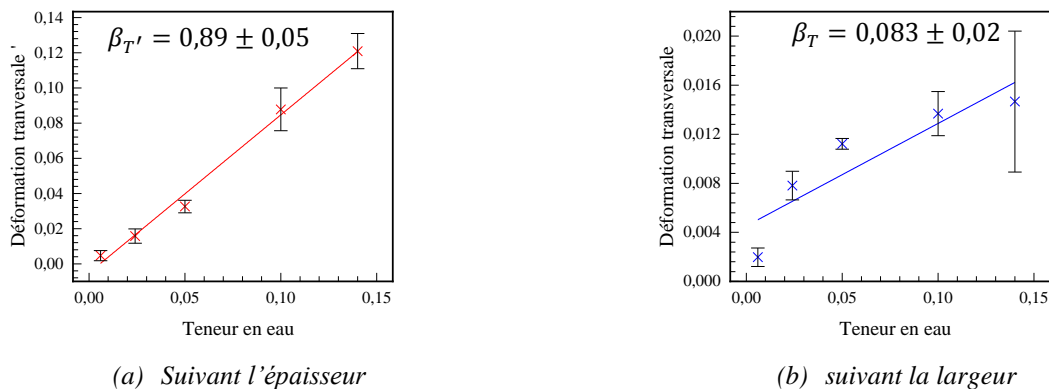


Fig. 4. Coefficients de gonflement transversaux des CRFL.

#### 4. Conclusion

Une méthode de détermination expérimentale des coefficients d'hygro-expansion radial du fil de lin  $\beta_r$  et des coefficients d'hygro-expansion du composite suivant les 3 directions principales ( $\beta_L$ ,  $\beta_T$  et  $\beta_{T'}$ ) a été développée.

Cette étude met en évidence la forte anisotropie du composite étudié. Elle a également montré que le coefficient d'hygro-expansion radial du fil de lin est égal à  $\beta_r = 1,11 \pm 0,07$ .

Cette étude a également mis en évidence un coefficient d'hygro-expansion du composite suivant la direction T' – correspondant aux variations dimensionnelles de l'épaisseur ( $\beta_{T'} = 0,89 \pm 0,05$ ), inférieur au coefficient de gonflement radial du fil de lin. Les gonflements différentiels de la résine et des fils bloquent le gonflement suivant l'épaisseur peuvent induire des contraintes interfaciales.

De plus, en première approche, le coefficient de gonflement suivant la direction des fibres est négatif ( $\beta_L = -0,03 \pm 0,003$ ) traduisant une diminution de la longueur des composites quand la teneur en eau augmente. Cependant, une analyse plus approfondie met en évidence des effets non-linéaires. On observe un changement de comportement pour une teneur en eau de l'ordre de 3 %, en effet, les déformations hygroscopiques sont positives lorsque la teneur en eau est inférieure à ce seuil. Au-delà, les déformations hygroscopiques deviennent négatives. Ce comportement est

supposé lié à la microstructure du renfort – détorsion des fils retordues de lin et au rétrécissement longitudinal supposé des fibres de lin avec l'augmentation de la teneur en eau.

Les coefficients de gonflement ( $\beta_L$  et  $\beta_{T'}$ ) permettent d'expliquer le coefficient d'hygro-expansion dans la direction des fils de trame. En effet, une bonne stabilité dimensionnelle dans cette direction a été mesurée ( $\beta_T = 0,083 \pm 0,02$ ). Le coefficient d'hygro-expansion longitudinal négatif des fils de trame de lin contrebalance le gonflement radial des fils de chaîne et le gonflement de la matrice.

## Références

- [1] Céline A., Fréour S., Jacquemin F., Casari P. « The hygroscopic behavior of plant fibers: a review. » *Frontiers in Chemistry* Vol. 1, pp 1-12, 2014
- [2] Morton W., et Hearle J. (2008). *Physical Properties of Textile Fibres (Fourth Edition)* In W. Morton, et J. Hearle (Eds.), Woodhead Publishing Series in Textiles. Woodhead Publishing
- [3] Bessadok A., Marais S., Gouanvé F., Colasse L., Zimmerlin I., Roudesli S., Métayer M. « Effect of chemical treatments of Alfa (*Stipa tenacissima*) fibres on water-sorption properties. » *Composites Science and Technology*, Vol 67, pp 685-697, 2007
- [4] Abida M., Gehring F., Mars J., Vivet A., Dammak F., Haddar M. « Effect of hygroscopy on non-impregnated quasi-unidirectional flax reinforcement behavior », *Industrial Crops and Products* Vol 128, pp. 315-322, 2019.
- [5] Le Duigou A., Merotte J., Bourmaud A., Davies P., Belhouli K., Baley C. « Hygroscopic expansion : A key point to describe natural fibre/polymer matrix interface bond strength. » *Composites Science and Technology*, Vol 151, pp 228-233, 2017
- [6] Marklund E., et Varna J. « Modeling the hygroexpansion of aligned wood fiber composites. » *Composites Science and Technology*, Vol 69, pp 1108 – 1114, 2009
- [7] Srubar W.V., Frank C.W., Billington S.L. « Modeling the kinetics of water transport and hydroexpansion in a lignocellulose-reinforced bacterial copolyester. » *Polymer*, Vol 53, pp 2152-2161, 2012
- [8] Agbossou A. et Pastor J. « Thermal stresses and thermal expansion coefficients of n-layered fiber-reinforced composites. » *Composites Science and Technology*, vol 57, pp 249-260, 1997.
- [9] Loos A. C. et Springer G. S. « Moisture absorption of graphite-epoxy composition immersed in liquids and in humid air » *Environmental Effects on Composite Materials*, vol 15, pp. 34-55, 1981.