

## Acceptation des essais usuels de vieillissement accéléré pour l'étude de composites biosourcés incorporant des fibres végétales

### *Acceptance of the usual accelerated aging tests for the study of plant fiber-reinforced polyester composites*

Moussa Gomina<sup>1</sup>, Matthias Rouch<sup>2</sup>, Annette Roy<sup>2</sup>, Davy Duriatti<sup>3</sup>

1 : CRISMAT/CNRT MATERIAUX  
ENSICAEN, 6 Bd Maréchal Juin, F- 14050 Caen Cedex 4  
e-mail : [moussa.gomina@ensicaen.fr](mailto:moussa.gomina@ensicaen.fr)

2 : Rescoll Rochefort  
ZA de Beligon, Rue Maurice Mallet, F- 17303 Rochefort Cedex 4  
e-mail : [matthias.rouch@rescoll.fr](mailto:matthias.rouch@rescoll.fr) et [annette.roy@rescoll.fr](mailto:annette.roy@rescoll.fr)

3 : DEPESTELE/TEILLAGE VANDECANDELAERE  
5 rue de l'Eglise, F- 14540 Bourguébus  
e-mail : [dduriatti@depestele.com](mailto:dduriatti@depestele.com)

### Résumé

Nous étudions les mécanismes de vieillissement accéléré (immersion dans l'eau portée à 23°C ou 70°C) et de vieillissement naturel (exposition aux intempéries pendant 24 mois) de mèches de fibres de lin, d'un polyester insaturé et du composite résultant fabriqué par infusion. La corrélation de ces résultats est utilisée pour évaluer si les conditions hydrothermiques usuelles de vieillissement des composites à fibres synthétiques sont encore adaptées pour prévoir le comportement de ces biocomposites sur le long terme. Le rôle des résidus d'écorces apparaît crucial pour la durabilité des biocomposites à fibres végétales.

### Abstract

We have investigated the mechanisms of accelerated aging (immersion in water at 23°C or 70°C) and natural aging (exposure to weather for 24 months) of flax fiber rovings, unsaturated polyester and the resulting composite made by infusion. The correlation of these results is used to check if the usual accelerated aging tests developed for synthetic fiber-reinforced polymers are suitable for plant fiber-reinforced composites in the long term. The role of bark residues appears crucial for the durability of plant fiber biocomposites.

**Mots Clés :** Composite biosourcé, fibre de lin, vieillissement accéléré ou naturel, endommagements, propriétés mécaniques

**Keywords:** Biocomposites, flax fiber, accelerated aging, natural aging, damage, mechanical properties

## 1. Introduction

L'association de fibres végétales à des polymères permet de proposer de nouveaux matériaux structuraux adaptés à des applications spécifiques. Cependant, l'acceptation de ces composites biosourcés dans le domaine de la construction de structures n'est pas encore acquise car l'évolution au cours du temps de leurs propriétés est mal connue. Le vieillissement d'un matériau polymère sous les effets de la température ou de l'humidité peut conduire, par absorption d'eau, à sa dégradation selon différents processus réversibles [1] ou irréversibles [2, 3]. Des travaux récents ont montré des changements morphologiques, dimensionnels et physico-chimiques importants suite à l'exposition de fibres de lin à l'humidité pendant des temps variés [3-7]. L'étude du vieillissement hydrothermique des composites biosourcés à fibres végétales est souvent menée par immersion dans de l'eau déminéralisée portée à 70°C pour différents temps d'immersion, selon une méthodologie établie pour les composites à fibres synthétiques (verre, carbone). Si de telles études permettent d'identifier les mécanismes d'endommagement et de quantifier leurs effets [8-10], il n'est pas

certain que les résultats soient transposables au vieillissement naturel. Ce travail a pour objectif de vérifier si les essais usuels de vieillissement accéléré traduisent fidèlement le vieillissement naturel des composites biosourcés incorporant des fibres de lin.

## 2. Matériaux et méthodes

### 2.1 Matériaux

Des mèches de fibres de lin (de la variété Arétha, cultivé dans la plaine de Caen en 2012 puis teillé) fournies par le teillage Vandecandelaère (groupe DEPESTELE) ont servi aux essais de vieillissement. Les rubans de 550 tex ont été associés à un fil de trame en lin (70 tex, au taux massique de 11%) pour fabriquer un quasi UD de masse surfacique 220 g/m<sup>2</sup>. La résine polyester ISO/DCPD, réputée pour sa faible absorption en eau et ses bonnes propriétés mécaniques, a été utilisée dans cette étude. Le mélange résine-catalyseur dégazé est coulé dans un moule en Téflon® et mis à réticuler à la température ambiante pendant 24h ; s'ensuit une post-cuisson de 4h à 60°C. L'étude DSC au 1<sup>er</sup> passage indique un taux de réticulation de 99,7% ; le domaine de transition vitreuse s'étend de 70°C à 105°C et la température de transition vitreuse est estimée à 90°C. Des plaques de composite comprenant 6 plis de quasi UD ont été fabriquées par infusion sous vide (-0,9 bar). Après une post-cuisson de 4h à 70°C, la Tg est mesurée par DSC à 92°C. La densité du composite mesurée par pycnométrie est  $\rho_c = 1,245$  et la porosité  $V_p = 7,03\%$ .

### 1.2 Méthodes

Une eau déminéralisée (pH = 7,2 à la température ambiante) a été utilisée pour le vieillissement accéléré à 23 ±2°C et 70 ±3°C. Pour atténuer la modification du pH du milieu au cours du maintien dans l'eau par le relargage de certains composés, 1/3 du volume total de la solution est renouvelé chaque semaine. Le choix de la température d'immersion nominale de 70°C est justifié par le souci de se placer en tout début de la zone de transition vitreuse du polyester afin de pouvoir induire une plastification au cours du maintien. Au cours du vieillissement accéléré, des échantillons ont été prélevés à des échéances prédéfinies pour différentes analyses et les essais mécaniques.

Le vieillissement naturel se rapporte aux conditions non contrôlées de température et d'hygrométrie qui prévalent pendant l'exposition des matériaux sur le toit du Centre de Recherche de RESCOLL pendant la durée de vieillissement. Pendant cette exposition, la température a varié entre -5°C et 38°C alors que l'hygrométrie ambiante variait entre 20% HR et 98% HR. Les temps de vieillissement naturel s'étendaient jusqu'à 20 mois pour les fibres et 24 mois pour le polymère massif et le composite. Les analyses microstructurales, les observations morphologiques et des endommagements ont été menées par microscopie optique et par MEB (type HITACHI TM-1000 à faible pression de vide). La caractérisation mécanique en tension des mèches de fibres de lin a été menée à l'aide d'un dispositif développé au laboratoire [13]. Les éprouvettes de polymère massif (forme haltère, longueur de jauge de 80 mm, section 10\*3 mm) ont été testées sur un banc de traction LLOYD LR 50K équipé d'une cellule de charge de capacité 5 kN à la vitesse de déplacement de 1 mm/min. Les éprouvettes de composite (forme haltère, longueur de jauge de 150 mm, section 25\*3 mm) ont été testées sur un banc de traction ZWICK/ROELL Z250 équipé d'une cellule de charge de capacité 250 kN à la vitesse de déplacement de 1 mm/min.

## 2. Résultats et discussion

### 3.1 Comportement des fibres

Dès les premiers jours d'immersion des fibres, on remarque visuellement un faible blanchiment, pour les deux températures explorées. Ce changement de couleur serait dû à la dégradation des lignines et de certains composés qui confèrent la couleur marron aux fibres végétales [6]. Ici, le blanchiment est associé à la désagrégation progressive des faisceaux en sous-faisceaux et fibres unitaires au cours du vieillissement, ce qui met en évidence la dégradation de la lamelle mitoyenne.

L'analyse de la morphologie des faisceaux et de l'état de surface des fibres indique que la présence de l'eau affecte très rapidement les composés pectiques contenus en grande quantité dans la lamelle mitoyenne et la paroi primaire des fibres (Fig. 1). Par ailleurs, les écorces très hydrophiles, qui couvrent partiellement les faisceaux, se gorgent d'eau et se désagrègent en présence d'eau. Ainsi, dès la 1<sup>ère</sup> semaine d'immersion, la destruction de la lamelle mitoyenne conduit à la division des faisceaux et la séparation des fibres unitaires. Leur surface est couverte de débris d'écorces et on remarque la présence de structures filamenteuses qui sont des champignons (Fig. 1b). Des observations similaires ont été reportées après seulement 72h d'immersion [7, 14]. Jusqu'à 2 semaines d'immersion, les seuls dommages relevés sont la dégradation des résidus corticaux et de la lamelle mitoyenne. Au bout de 6 semaines, des craquelures et des arrachements partiels sur les fibres apparaissent, ce qui correspond certainement à la dégradation partielle de la paroi primaire P (Fig. 1c). Au-delà de 6 semaines, la dégradation de la fibre n'est pas aggravée, mais le lessivage lent et continu se poursuit. Bourmaud et al. [14] ont mis en évidence un relargage important de sucres contenus dans les pectines, dû aux enzymes secrétés par les champignons. La figure 2 illustre les mécanismes de dégradation des parois cellulaires.

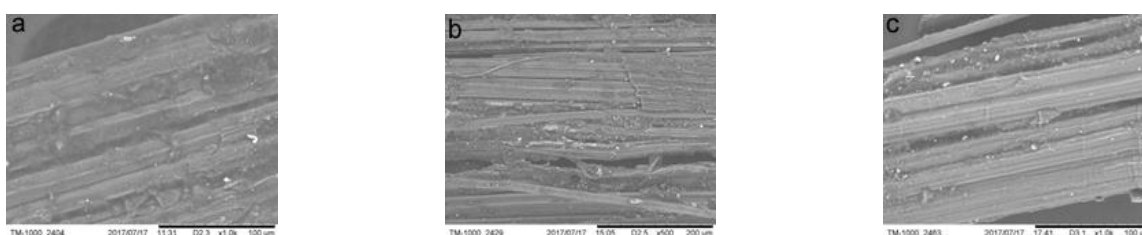


Fig. 1 : État de surface des mèches de fibres en immersion à 23°C :  $t=0$  (a) ; 2 semaines (b) ; 6 et 10 semaines (c).

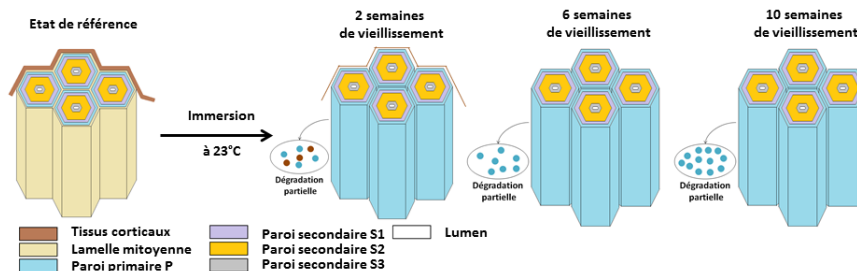


Fig. 2 : Mécanismes de dégradation des parois cellulaires des fibres de lin en immersion dans l'eau portée à 23°C

L'élévation de la température du bain d'immersion de 23°C à 70°C conduit à une destruction très rapide de la lamelle mitoyenne et de la paroi primaire, ainsi que des tissus corticaux qui maintenaient les fibres dans les faisceaux ; le lessivage est accéléré (Fig. 3). Après 6 semaines de vieillissement, il n'y a pratiquement plus de résidus d'écorces. Les fibres unitaires présentent une surface bien moins lisse qu'après 2 semaines d'immersion : la couche S1 est à nu. Ces dégradations sont accentuées jusqu'à la destruction complète de S1 et une dégradation partielle de la couche S2.

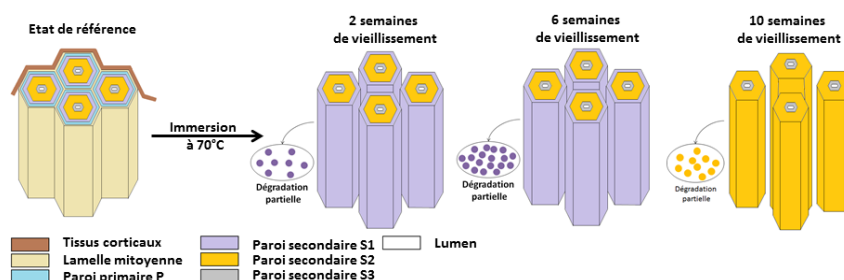


Fig. 3 : Mécanismes de dégradation des parois cellulaires des fibres de lin en immersion dans l'eau portée à 70°C

Les courbes  $\sigma$ - $\epsilon$  des mèches de lin sollicitées par traction monotone aux différentes échéances sont présentées dans les figures 4a et 4b pour les températures de 23°C et 70°C, respectivement. Dès la première semaine d'immersion, on relève une diminution du module de Young alors que la contrainte ultime n'est pas affectée. Le ramollissement des écorces et la destruction de la lamelle mitoyenne surviennent quand le maintien est porté à 2 semaines ; le report de contrainte entre les fibres étant dégradé, la contrainte à rupture s'en ressent.



Fig. 4 : Courbes de comportement en tension des mèches de lin (longueur de jauge  $l_0 = 20$  mm) en fonction du temps de vieillissement en immersion dans l'eau à 23°C (a) ; 70°C (b).

Au bout de 6 semaines de vieillissement, la contrainte à rupture a diminué de moitié par rapport au matériau de référence (à 23°C ; 50%HR). Le lessivage continu participe à réduire la cohésion des faisceaux. Après 10 semaines la contrainte et la déformation maximales représentent, respectivement, 1/3 et 3/4 des niveaux relevés dans les conditions de référence. La diminution de la raideur des mèches suit logiquement l'accroissement du temps d'immersion, sauf qu'à partir de 6 semaines cette décroissance semble se stabiliser.

En portant la température de l'eau à 70°C, les cinétiques d'endommagement sont accélérées et cela conduit à une dégradation mécanique importante qui affecte surtout la contrainte maximale. Au bout de 10 semaines, la mèche ne présente plus aucune tenue mécanique. L'effet de synergie entre la température et l'eau amène une fragilisation qui rend les mèches inaptes à toute utilisation.

Les effets de l'immersion prolongée des fibres dans l'eau sur les propriétés élastiques et de rupture sont représentés sur figure 5. Tout d'abord, la dégradation de la lamelle mitoyenne survient par les phénomènes d'hydrolyse et de dépolymérisation pendant les 2 premières semaines d'immersion à 23°C. Cela influe sur les propriétés élastiques des mèches (Fig. 5a) par destruction de la cohésion entre les fibres, mais n'affecte pas celles à rupture (Fig. 5b). La dégradation des hémicelluloses et leur lessivage au cours du maintien participe fortement à la diminution de la rigidité et de la résistance à rupture de la mèche (6). A 70°C, les phénomènes de dégradation sont accélérés et accentués aux temps courts (lamelle mitoyenne et paroi primaire), aux temps longs (parois secondaire (couche S1 et S2)) et tout au long du maintien pour la matrice amorphe. Au-delà de 6 semaines de vieillissement, la mèche n'a plus de tenue mécanique.

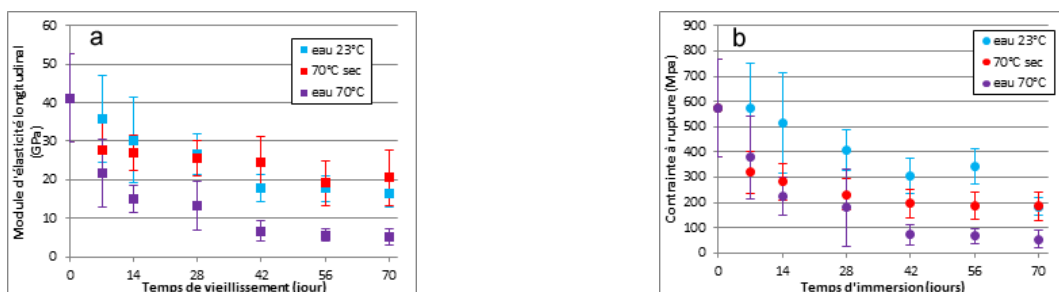


Fig. 5 : Évolutions des propriétés élastiques(a) et à rupture (b) des mèches de fibres de lin (longueur de jauge  $l_0 = 20$  mm) en fonction du temps de vieillissement à 70°C à sec, ou en immersion dans l'eau à 23°C et 70°C.

Nous retiendrons que les mécanismes de vieillissement relevés après 70 jours en immersion à 23°C sont semblables à ceux relevés après seulement 14 jours d'immersion à 70°C. Pendant le vieillissement sur le toit à l'air libre, le blanchiment des fibres est de plus en plus prononcé. Ce changement de couleur s'explique par la photo-oxydation de la lignine par les UV qui, en libérant des groupes carbonyles, participe à accroître la concentration des groupes chromophores. La décohésion des fibres dans les faisceaux augmente jusqu'à 12 mois de vieillissement et, au-delà, les fibres semblent plus fines avec un aspect souple. Elles sont davantage collées entre elles sous forme de gros fils par l'action des pectines libérées par les pluies.

L'influence du temps d'exposition au vieillissement naturel sur l'allure des courbes  $\sigma$ - $\epsilon$  est présentée sur la figure 6a. Au 4 mois d'exposition, la contrainte à rupture est affectée mais la rigidité est inchangée. Au-delà de ce temps, le comportement global est dégradé quand le temps d'exposition augmente, mais pour les mêmes temps les abattements sont plus faibles que ceux relevés à 23°C. La rigidité au-delà de 300 jours d'exposition est semblable à celle après environ 42 jours de vieillissement en immersion à 23°C. Par ailleurs, l'observation des surfaces des fibres révèle des endommagements identiques à ceux des mèches immergées à 23°C, mais ici pour des temps beaucoup plus longs. Les variations des propriétés élastiques et de rupture indiquent une décroissance continue pendant les 300 premiers jours, puis une stabilisation au-delà (Fig. 6b et 6c).

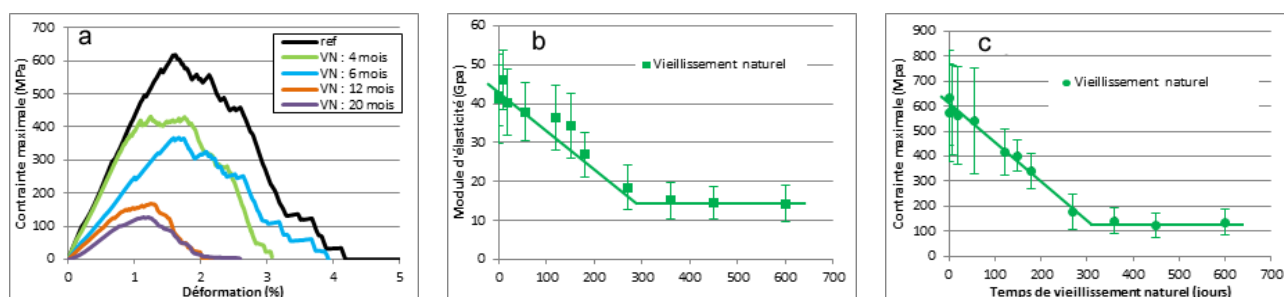


Fig. 6 : Courbe de comportement (a) et variations des propriétés élastiques et de rupture des mèches de lin exposées aux intempéries naturelles pendant différents temps.

### 3.2 Comportement du polymère massif

L'immersion dans l'eau aux différents temps à 23°C ne change pas notablement l'aspect visuel (couleur verdâtre transparente) du polyester insaturé utilisé dans ce travail. En revanche, l'élévation de la température du bain d'immersion entraîne un changement brutal (couleur orange) et une opacification, et ce dès le début d'immersion. Le comportement en traction uniaxiale du polymère massif est représenté en fonction du temps de vieillissement accéléré ou naturel. Après le vieillissement naturel ou accéléré aux deux températures, les éprouvettes sont conditionnées dans l'état de référence (23°C ; 50%HR) avant les essais mécaniques. Le comportement apparaît essentiellement fragile. On remarque qu'après séchage, les courbes des échantillons vieillis dans l'eau portée à 70°C se rapprochent de celle du matériau référence ; ceci signifie que la plastification à cette température relève d'un vieillissement physique. Cela est corroboré par la recouvrance du module de Young après séchage. Le vieillissement naturel pendant 2 ans n'affecte pas le module de Young du polymère massif ; il est également inchangé après séchage suite au vieillissement accéléré à 23°C ou 70°C. La variation de la contrainte à la rupture au cours du vieillissement naturel est étonnamment faible (15% survenant au bout de 344 jours) et présente une allure comparable à celle d'un vieillissement accéléré par immersion à 23°C (20% au bout de 28 jours). Rappelons que ce polyester insaturé a été choisi dans cette étude surtout pour sa faible sensibilité à l'eau [5].

### 3.3 Comportement du composite

L'observation au MEB des coupes transverses du composite UD brut de fabrication révèle la présence de résidus d'écorces entre les faisceaux de fibres et la matrice polyester (flèche rouge dans



Fig. 9a). Bien que ces résidus occupent une faible proportion de l'interface fibre/matrice (4%), leur gonflement/dégonflement peut induire une dégradation importante de l'interface fibre/matrice [13]. La courbe de comportement  $\sigma$ - $\varepsilon$  du composite originel sur la figure 9b peut être schématisée par deux zones distinctes. A la zone I qui s'étend depuis l'origine O jusqu'au point d'inflexion i est associée un module  $E_1$  (module d'élasticité longitudinal du composite). La meilleure tangente à la courbe dans zone II (entre le point i et celui de rupture brutale) définit un module  $E_2$ .

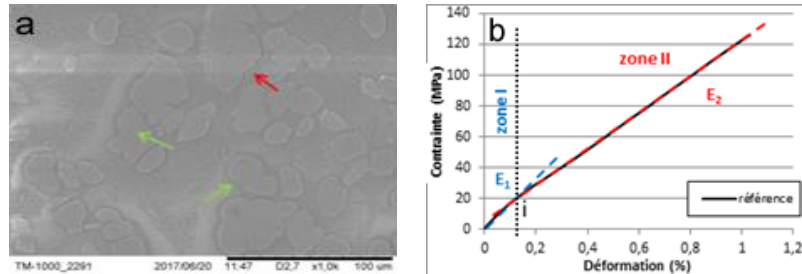


Fig. 9 Composite brut de fabrication : image MEB d'une coupe transverse (a) ; courbe contrainte-déformation (b)

Dans le bain d'immersion, l'eau s'infiltre par capillarité dans la fibre et induit une dégradation partielle des interfaces qui se manifeste par des microfissures (flèches vertes dans Fig. 10). Celles-ci se propagent à partir des fibres dans la matrice par gonflement différentiel entre les deux constituants, mais aussi par la dégradation des résidus d'écorce (flèches rouges dans Fig. 10) et la destruction des parois cellulaires des fibres. Au cours du vieillissement en immersion à 23°C les dommages relevés sont la dégradation des interfaces fibre/matrice et les décohésions fibre/fibre, ces derniers étant peu nombreux. Les mécanismes de dégradation prépondérants sont donc les déchaussements des faisceaux au séchage et le lessivage des résidus de tissus corticaux. Si la dégradation des interfaces ne semble pas être catastrophique au cours d'un vieillissement en immersion à 23°C, l'élévation de la température d'immersion à 70°C aggrave ces dommages dès 14 jours de maintien (Fig. 10c). Cette durée d'immersion correspond à celle pour laquelle la prise en masse et le gonflement présentent une forte baisse. Au-delà de ce temps, cette dégradation des interfaces qui résulte de celle des fibres se poursuit (Fig. 10d). Dès lors, la bonne cohésion initiale des fibres entre elles et avec la matrice n'est plus assurée.

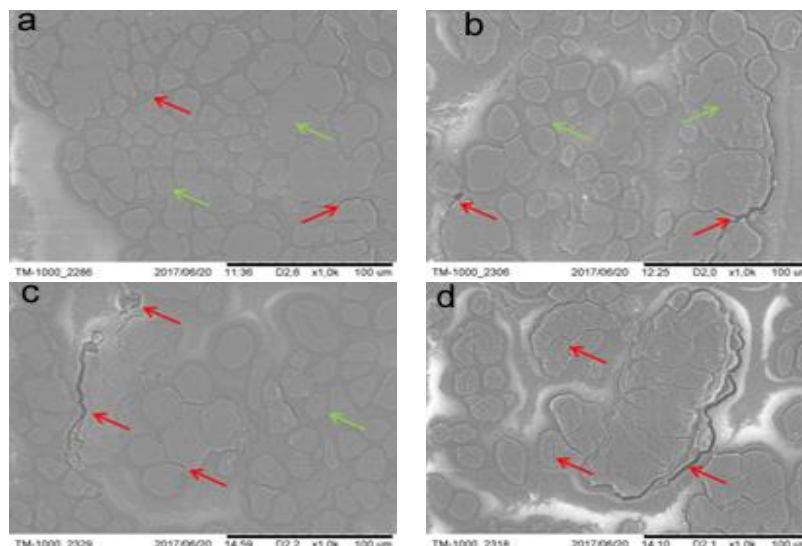


Fig. 10 : Coupes transverses du composite vieilli par immersion dans l'eau à 23°C (a et b) ou 70°C (c et d) séché. Différents temps d'immersion : 14 jours (a et c) et 70 jours (b et d)

Les courbes de traction  $\sigma$ - $\varepsilon$  obtenues sur les éprouvettes de composite dès la sortie du bain (état humide noté V) et après séchage (état sec noté VS) sont présentées sur la figure 11a, en

comparaison à celle du matériau brut de fabrication conditionné à 23°C et 50%HR. Le comportement des éprouvettes humides témoigne d'une plastification notable dès 14 jours d'immersion, qui commence par les fibres. La contribution du polyester insaturé à la plastification du composite à cette température est relativement faible. Entre les zones I et II définies précédemment (Fig. 9b), on peut remarquer sur la figure 11b un nouveau domaine (zone III) dans lequel le module est intermédiaire entre  $E_1$  et  $E_2$ . Cette zone est caractéristique d'un comportement viscoélastique du matériau en présence d'eau. Les courbes de comportement des éprouvettes vieillis puis séchées (VS) sont très ressemblantes à celle de l'éprouvette testée dans les conditions de référence (Fig. 9b), indépendamment du temps d'immersion. En particulier, le recouvrement des courbes de comportement est quasi total dans la zone I et il n'y a plus de zone III. Ceci montre que l'existence de cette zone est bien liée à la présence de l'eau dans la fibre. Par contre, le module  $E_2$  des éprouvettes séchées après vieillissement est fortement réduit par rapport à la référence. Ceci peut s'expliquer par une combinaison des endommagements survenus pendant l'immersion : des modifications structurales des fibres exposées à l'eau pendant des temps longs, les fissurations aux interfaces faisceau/matrice qui amoindrissent le transfert de charge, les endommagements secondaires créés dans la matrice. A la différence des éprouvettes immergées dans l'eau à 23°C et testées dans l'état humide, les courbes  $\sigma$ - $\varepsilon$  de celles portées à 70°C ne présentent pas de point d'inflexion. L'interface fibre/matrice étant détériorée dès le début de l'immersion dans l'eau à 70°C, la zone I est estompée sur la courbe de comportement qui débute par la zone III et présente une allure linéaire (Fig. 11c).

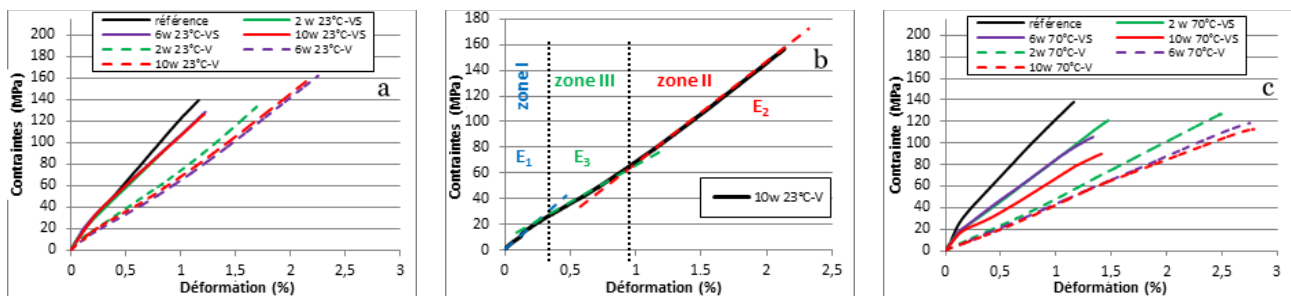


Fig. 11 : Courbes contrainte-déformation dans l'état humide (V) ou séché (VS) après vieillissement dans l'eau à 23°C (a) ou 70°C (c). Le détail des courbes de vieillissement humide à 23°C sont donnés dans (b).

Après 6 mois de vieillissement naturel, on remarque la présence de quelques fissures de décohésion fibre/matrice du fait de la détérioration des résidus de tissus corticaux et du gonflement/retrait des fibres (Fig. 12a). A partir de 12 mois, les fissures sont plus ouvertes et elles se propagent davantage le long des interfaces fibre/matrice (Fig. 12b). De plus, les interfaces fibre/fibre et les fibres elles-mêmes commencent à se dégrader. Les fibres unitaires présentent des fissurations sur leur section, signe d'un endommagement causé par un gonflement différentiel entre les parois et les sous-couches cellulaires [11, 15].

L'augmentation du temps de vieillissement ne semble pas accroître la densité de fissures (Fig. 12c) mais leur propagation ainsi que la dégradation des interfaces fibre/fibre se poursuivent (Fig. 12d). Cela suggère qu'à partir de 12 mois, la lamelle mitoyenne commence à se dégrader et que les phénomènes de gonflement/retrait différentiels endommagent davantage les interfaces. Il est important de noter que l'adhésion entre les fibres unitaires et la matrice est de bonne qualité. Cette observation met en évidence plusieurs points intéressants : la formation des fissures se fait *via* les résidus d'écorce et le gonflement/retrait différentiel, ce qui dégrade les interfaces fibre/matrice et fibre/fibre (a) ; la paroi primaire des fibres n'est pas dégradée (b). Les mécanismes activés lors du vieillissement naturel sont donc identiques à ceux relevés dans un vieillissement dans l'eau à 23°C.

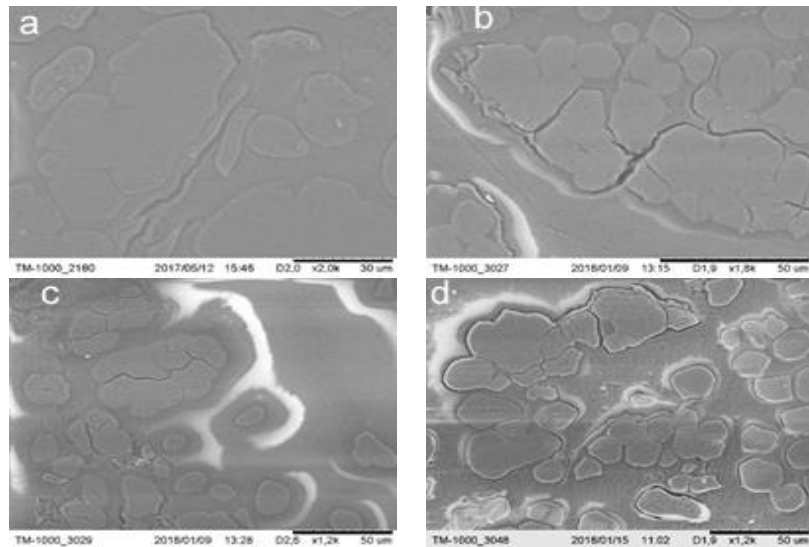


Fig. 12 Images MEB du composite en vieillissement naturel pendant 6 mois (a) ; 12 mois (b) ; 18 mois (c) et 24 mois (d)

Les courbes  $\sigma$ - $\epsilon$  obtenues par traction uniaxiale après différents temps d'exposition au vieillissement naturel sont présentées sur la figure 13. Ces courbes de comportement présentent la même allure que celle du composite de référence, à savoir la présence d'un point d'inflexion séparant deux zones de module  $E_1$  et  $E_2$ . Le module d'élasticité  $E_1$  se maintient jusqu'au 12<sup>ème</sup> mois puis diminue lentement quand le temps de vieillissement augmente (environ 15% de perte en 24 mois d'exposition), alors que  $E_2$  décroît. Cependant, une lecture attentive indique que  $E_2$  baisse au bout du 3<sup>ème</sup> mois d'exposition, puis se maintient pendant les 9 mois suivants. Pendant les 12 premiers mois, les fibres surtout sont détériorées alors que l'interface fibre/matrice est intacte. Par la suite, la détérioration des fibres et des interfaces se conjuguent pour abaisser la rigidité du composite.

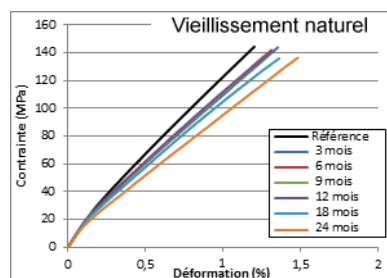


Fig. 13 : Courbes de comportement du composite exposé au vieillissement naturel pendant différents temps

Les faciès de rupture du composite exposé aux différentes conditions hygrothermiques sont présentés dans la figure 14.

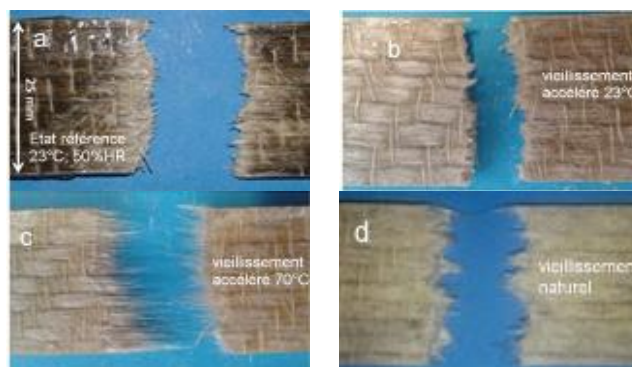


Fig. 14 Faciès de rupture du composite dans l'état de référence (a) ; après vieillissement accéléré dans l'eau à 23°C (b) ou 70°C (c) ; après vieillissement naturel pendant 24 mois (d)



Les faciès de rupture plats (rectilignes) pour le composite testé dans l'état de référence (Fig. 14a) ne sont quasiment pas modifiés après 70 jours d'immersion dans l'eau à 23°C (Fig. 14b), les fibres restent groupées en faisceaux. Par contre, après un séjour de 70 jours à 70°C, les faciès présentent de grandes longueurs de fibres extraites (Fig. 14c) qui témoignent de l'ampleur des endommagements décrits précédemment. Les faciès après un vieillissement naturel sont similaires à ceux du composite vieilli à 23°C (Fig. 14d). Des comparaisons ont été faites entre les images de microscopie optique et MEB du composite brut de fabrication, vieilli dans différentes conditions (immersion dans l'eau à 23°C pendant 140 jours ou à 70°C pendant 14 jours) ou vieilli naturellement pendant 24 mois. Il ressort qu'une immersion dans l'eau à 23°C pendant 140 jours induit des dommages similaires à un vieillissement naturel de 24 mois, quant à la qualité des interfaces : dans les deux cas on relève quelques fissurations aux interfaces fibre/matrice. Par contre, après seulement 14 jours d'immersion à 70°C le matériau est dans un état encore plus endommagé : les interfaces fibre/matrice et fibre/fibre présentent des dégradations plus sévères du fait de la détérioration supplémentaire des fibres, à savoir la destruction des parois cellulaires pour des temps longs. Vu les effets d'un vieillissement en immersion à 70°C sur les mécanismes d'endommagement du composite, il s'avère que ces conditions ne peuvent pas simuler un vieillissement naturel sur la durée étudiée (24 mois). L'immersion à 70°C fait intervenir un mécanisme d'endommagement supplémentaire (destruction prononcée des fibres) qui s'avère très destructif pour le composite, en comparaison avec les dommages observés en vieillissement naturel. Les variations des modules élastiques et de la contrainte à rupture en fonction du temps d'exposition sont présentées dans la figure 15.

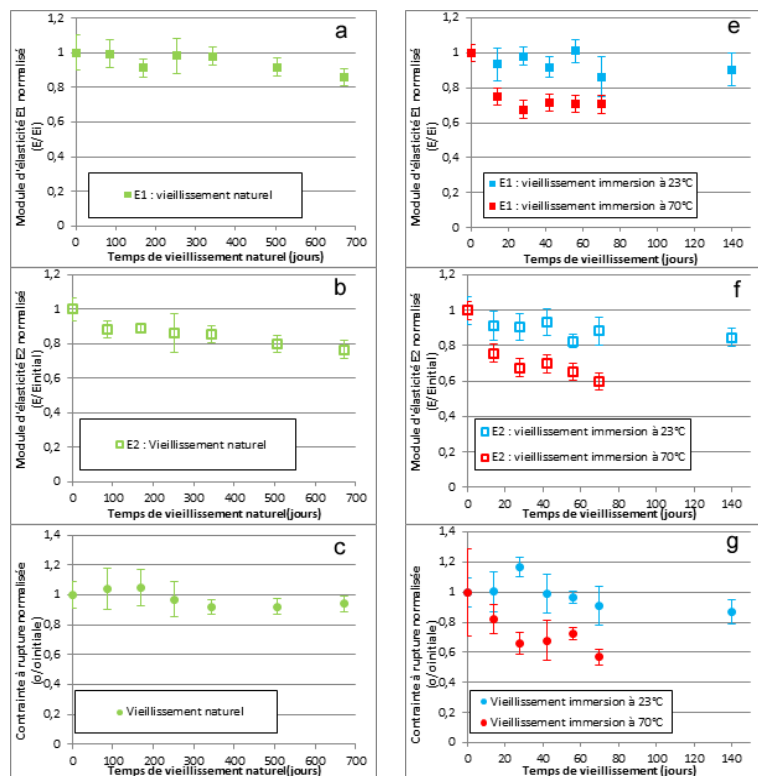


Fig. 15 : Comparaison des propriétés élastiques (modules  $E_1$  et  $E_2$ ) et mécaniques (contrainte et déformation ultimes) du composite après différents temps d'exposition au vieillissement naturel et aux vieillissements accélérés

L'analyse comparative des propriétés mécaniques associées au vieillissement à 23°C et au vieillissement naturel indique des pertes quasiment identiques (mais pour des temps bien différents) : environ -15% pour le module d'élasticité  $E_1$ , -20% pour le module  $E_2$  et -10% pour la contrainte à rupture. Les endommagements suite au vieillissement en immersion à 70°C conduisent à des

baisses des propriétés mécaniques bien supérieures aux niveaux du vieillissement naturel. Les pertes surviennent dès 14 jours d’immersion : environ 35% pour le module d’élasticité et 20% pour la contrainte ultime.

### 3. Conclusions

Nous avons identifié les mécanismes d’endommagement de mèches de fibres de lin et d’un polyester insaturé au cours de vieillissements accélérés dans l’eau à 23°C et 70°C (jusqu’à 70 jours), et d’un vieillissement naturel (jusqu’à 24 mois). Les effets de ces endommagements sur les propriétés élastiques et mécaniques ont été quantifiés. Ces données ont permis de mieux comprendre les mécanismes d’endommagement et de rupture du composite UD fabriqué à partir de ces constituants, et soumis aux mêmes conditions de vieillissement. La comparaison des mécanismes de vieillissement accélérés et des abattements des propriétés élastiques et mécaniques associés avec ceux du composite soumis au vieillissement naturel indique que l’essai de vieillissement accéléré dans l’eau à 23°C donne une bonne représentation du vieillissement naturel de ce composite biosourcé. Par contre, le vieillissement accéléré dans l’eau à 70°C active des mécanismes d’endommagement qui n’apparaissent pas lors du vieillissement naturel, et dont les effets surestiment les abattements relevés expérimentalement. Le vieillissement accéléré dans l’eau à 70°C usité pour les composites à fibres synthétiques n’est pas représentatif du vieillissement naturel de ces composites biosourcés sur le long terme.

### Remerciements

Les auteurs remercient DEPESTELE pour la fourniture des fibres de lin et BpiFrance pour le financement du projet TRAMPLIN du PIAVE «Textiles techniques et intelligents ». Ils remercient les partenaires à ce projet : BMP, Fantex et MFtech pour leur collaboration dans ces travaux.

### Références

- [1] M. J. Adamson, « Thermal expansion and swelling of cured epoxy resin used in graphite/epoxy composite materials », *Journal of Materials Science*, vol. 15, no. 7, p.1736-1745, 1980.
- [2] B. Jacques, M. Werth, I. Merdas, F. Thominet, et J. Verdu, « Hydrolytic ageing of polyamide 11. 1. Hydrolysis kinetics in water », *Polymer*, vol. 43, no. 24, p. 6439-6447, nov. 2002.
- [3] A. Thuault, S. Eve, D. Blond, J. Breard, M. Gomina, “Effects of the hydrothermal environment on the mechanical properties of flax fibres”, *Journal of Composite Materials* (2014) Vol. 48 Issue 14 pp. 1699-1707
- [4] A. Stamboulis, C. A. Baillie, and T. Pejs, “Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers,” *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. Part A, no. 32, pp. 1105–1115, Dec. 2000.
- [5] M. Rouch, M. Gomina, A. Roy, G. Alise, D. Duriatti, “Influence d’un vieillissement hygrothermique sur les propriétés physiques et mécaniques d’un composite biosourcé fibres de lin-polyester insaturé », *Comptes Rendus des JNC 20 – Ecole des Ponts ParisTech*, – 28-30 juin 2017, France.
- [6] Krishna K. Pandey, “Study of the effect of photo-irradiation on the surface chemistry of wood,” *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 90, pp. 9–20, 2005.
- [7] B. Madsen, P. Hoffmeyer, and H. Lilholt, “Hemp yarn reinforced composites – III. Moisture content and dimensional changes,” *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 43, no. 11, pp. 2151–2160, Nov. 2012.
- [8] M. Assarar, D. Scida, A. Al Mahi, C. Poilâne, R. Ayad, Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: flax-fibres and glass-fibres, *Mater. Des.* 32, (2011) 788-795.
- [9] A. Le Duigou, A. Bourmaud, and C. Baley, “In-situ evaluation of flax fibre degradation during water ageing,” *Ind. Crops Prod.*, vol. 70, pp. 204–210, 2015.
- [10] Y. Li and B. Xue, “Hydrothermal ageing mechanisms of unidirectional flax fabric reinforced epoxy composites,” *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 126, pp. 144–158, Apr. 2016
- [13] A. Barbulée, “Compréhension des effets du défibrage sur la morphologie, les propriétés et le comportement mécanique des faisceaux de fibres de lin. Etude d’un composite dérivé lin-époxyde,” Thèse de doctorat, Université de Basse-Normandie, Caen, 2015.
- [14] A. Bourmaud, C. Morvan, and C. Baley, “Importance of fiber preparation to optimize the surface and mechanical properties of unitary flax fiber,” *Ind. Crops Prod.*, vol. 32, no. 3, pp. 662–667, nov. 2010.
- [15] S. Alix, L. Colasse, C. Morvan, L. Lebrun, and S. Marais, “Pressure impact of autoclave treatment on water sorption and pectin composition of flax cellulosic-fibres,” *Carbohydr. Polym.*, vol. 102, pp. 21–29, Feb. 2014.