

# **Influence du vieillissement hygrothermique sur le comportement mécanique de composites conventionnels ou biosourcés destinés au renforcement de structures**

## *Effects of hygrothermal ageing on the mechanical behavior of conventional composites and bio-composites intended for structural reinforcement*

**Robert Chlela<sup>1</sup>, Wendlamita Zombré<sup>2</sup>, Marc Quiertant<sup>3</sup>, Laurence Curtil<sup>2</sup>, Karim Benzarti<sup>1</sup>**

1 : Université Paris-Est, Laboratoire Navier (UMR 8205), IFSTTAR,  
14-20 Boulevard Newton, F-77447 Marne-la-Vallée Cedex 2  
e-mail : robert.chlela@ifsttar.fr et karim.benzarti@ifsttar.fr

2 : Laboratoire des Matériaux Composites pour la Construction (LMC<sup>2</sup>)  
Université Claude Bernard Lyon 1  
82 boulevard Niels Bohr, 69622 Villeurbanne  
e-mail : wendlamita.zombre@etu.univ-lyon1.fr et laurence.curtil@univ-lyon1.fr

3 : Université Paris-Est, IFSTTAR, MAST, EMGCU  
14-20 Boulevard Newton, F-77447 Marne-la-Vallée Cedex 2  
e-mail : marc.quiertant@ifsttar.fr

### **Résumé**

Face au vieillissement du parc d'infrastructures, le renforcement structural par collage externe de matériaux composites s'impose comme une solution de choix pour la réhabilitation des ouvrages. Néanmoins, certaines questions restent posées quant à la durabilité à long terme de ces renforcements et à leur impact sur l'environnement.

Dans ce contexte, cette étude réalisée dans le cadre du projet MICRO financé par l'Agence nationale de la recherche, vise à étudier l'influence du vieillissement hygrothermique sur les performances mécaniques de composites traditionnels à matrice époxy renforcée par des fibres de carbone et d'un système composite innovant à empreinte environnementale réduite. Ce système bio-sourcé, qui a été spécifiquement développé dans le cadre du projet, est constitué d'une matrice bio-époxy renforcée par des fibres de lin.

Le plan d'expériences a consisté à soumettre les deux types de composites ainsi que des dalles de béton renforcées par ces deux systèmes, à différentes conditions de vieillissement accéléré sous six combinaisons de température et d'humidité relative. Des échantillons ont également été soumis à un vieillissement naturel en environnement extérieur, dans le but de comparer les cinétiques des vieillissements accélérés à la cinétique de vieillissement en condition naturelle. Les propriétés mécaniques des composites ont ensuite été caractérisées périodiquement par des essais de traction, des essais de cisaillement inter-laminaire et des essais de flexion 3 points avec appuis rapprochés, tandis que les propriétés d'interface des assemblages collés béton/composites ont été évaluées par des essais d'arrachement. Par ailleurs, des essais physico-chimiques ont systématiquement été réalisés pour mettre en évidence d'éventuelles modifications microstructurales ou dégradations des composites au cours des différents vieillissements.

### **Abstract**

In the context of ageing infrastructures, structural reinforcement by externally bonded fibre reinforced polymers offers a reliable solution for the rehabilitation of structures. Nevertheless, some questions remain concerning the long-term sustainability of these reinforcements and their environmental impact.

This study, which is part of the MICRO project funded by the National Research Agency (ANR), aims to study the effect of hygrothermal ageing on the mechanical performance of traditional carbon/epoxy composites and an innovative composite system with a reduced environmental footprint. This bio-sourced system, which was specifically developed as part of this project, consists of a bio-epoxy matrix reinforced with flax fibres.

The design of experiment consisted in subjecting both types of composite laminates, as well as concrete slabs reinforced with these two systems, to different accelerated ageing conditions under six combinations of temperature and relative humidity. Samples were also subjected to natural ageing in the external environment, in order to compare ageing kinetics under accelerated and natural conditions. The mechanical properties of composites were then periodically characterized by tensile tests, interlaminar shear tests and short beam 3-point-bending tests, while the interface concrete/composite was evaluated by pull-off tests. In addition, physico-chemical tests were systematically carried out to identify possible microstructural modifications or degradation of the composites during the various ageing processes.

**Mots Clés :** Vieillissement hygrothermique ; Composites époxy/fibres de carbone ; Composites époxy/fibres de lin ; Durabilité

**Keywords:** Hygrothermal ageing; Carbone/epoxy composites; Flax/epoxy composites; Durability

## 1. Introduction

Au cours des dernières années, le renforcement des structures en béton à l'aide des composites collés est devenu une pratique courante dans le monde entier, en raison de son efficacité et de sa facilité d'installation directement à la surface de la structure. Cette technique fait généralement appel à des matériaux composites constitués de fibres synthétiques, dont le procédé de fabrication est à la fois énergivore et polluant. Par conséquent, en raison des préoccupations sociétales concernant le changement climatique et la réduction des émissions de carbone, le développement de matériaux de réparation plus écologiques devient un objectif pertinent. Cette considération a conduit au développement de bio-composites dans lesquels les fibres synthétiques (fibres de carbone ou de verre, majoritairement), sont remplacées par des fibres végétales comme le lin, le chanvre ou le sisal [1-2].

Cependant, avec l'introduction de fibres végétales, de nouveaux problèmes de durabilité peuvent apparaître, en raison de la structure creuse et de la nature hydrophile de ces fibres qui rendent les bio-composites sensibles à l'humidité en conditions de service. De multiples études ont ainsi montré que les propriétés mécaniques des composites à base de fibres végétales sont fortement affectées par l'absorption d'eau [3–6], mais il n'existe pas encore de compréhension claire des effets de couplage température/humidité sur le comportement à long terme de ces matériaux.

La présente étude vise donc à mieux comprendre l'impact du vieillissement hygrothermique (et des couplages température/humidité) sur les performances mécaniques d'un bio-composite spécifique constitué d'une matrice époxydique partiellement bio-sourcée et renforcée par des fibres de lin, puis à comparer ces évolutions à celles de composites plus traditionnels renforcés par des fibres de carbone.

## 2. Étude expérimentale

### 2.1 Matériaux et vieillissements

Concernant les composites biosourcés, les tissus unidirectionnels (UD) en fibres de lin utilisés dans cette étude ont été produits par le Groupe Depestele, une entreprise française de textile naturel. La résine époxy (CHS-EPOXY G520) a été fournie par Spolchemie, une entreprise chimique tchèque connue pour ses produits écologiques. Cette résine (30% bio-sourcée) a été mélangée avec un durcisseur amine 100% bio-sourcé dans des proportions stœchiométriques. Concernant les composites de carbone, les tissus UD en fibres de carbone SikaWrap® -230 et la résine époxy Sikadur® -330 ont été fournis par la société SIKA France.

Des plaques de composites bio-epoxy/lin et de composites époxy/carbone, constituées de deux couches de tissus UD, ont été préparées par stratification au contact en imprégnant chaque type de tissus par sa matrice polymère. Les composites de lin et carbone obtenus présentent une fraction volumique de fibres d'environ 16 % et 19 % respectivement. La polymérisation de la matrice s'est effectuée dans des conditions de laboratoire (20 °C, 35-50 % HR) pendant une durée de 3 semaines. En plus des plaques précédentes, des dalles de béton renforcées par ces composites ont également été préparées en vue caractériser l'adhérence béton/composite par des essais d'arrachement. Les dalles support en béton ont été stockées pendant 90 jours avant de renforcer leur face supérieure (face non coffrée) avec une seule couche de tissu de renfort imprégnée par sa propre matrice. Comme précédemment, une cure de 3 semaines a été réalisée avant l'exposition des dalles renforcées aux différentes conditions de vieillissement. L'ensemble des échantillons (i.e. plaques stratifiées et dalles de béton renforcées) a ensuite été divisé en 7 séries qui ont été placées dans différents environnements, correspondant soit à des conditions de vieillissement accéléré en laboratoire, soit à un vieillissement naturel en milieu extérieur dans la région Lyonnaise (voir tableau 1).

Nom	Température	Humidité	Échéances des essais
V1	20°C	50% HR (enceinte climatique)	3, 6 et 12 mois
V2	20°C	Immersion dans l'eau	3, 6 et 12 mois
V3	60°C	50% HR (enceinte climatique)	3, 6 et 12 mois
V4	40°C	Immersion dans l'eau	3, 6 et 12 mois
V5	60°C	75% HR (enceinte climatique)	3, 6 et 12 mois
V6	60°C	Immersion dans l'eau	3, 6 et 12 mois
VN	Exposition extérieure à Lyon, France		12 mois

Tab. 1. Conditions de vieillissement

Les conditions de vieillissement accéléré ont été déterminées selon un plan d'expérience basé sur la matrice de Hoke (simplification d'une matrice factorielle à 3 niveaux par facteur, où les facteurs dans notre cas sont la température (T) et l'humidité relative (HR)). Les 6 combinaisons sélectionnées appelées V1 à V6, ont été appliquées en utilisant des chambres climatiques, ou en immergeant les échantillons dans des réservoirs d'eau régulés en température. La condition d'exposition VN (Tab.1) correspond au vieillissement naturel en milieu extérieur.

Cet article présente les résultats recueillis pendant la première année de l'étude de durabilité (jusqu'à 12 mois de vieillissement pour les composites de lin et 6 mois pour les composites de carbone).

## 2.2 Méthodes de caractérisation

### 2.2.1. Cinétique de sorption d'eau

Pour évaluer la cinétique de sorption de l'eau, des échantillons de  $25 \times 25 \text{ mm}^2$  ont été soumis aux différentes conditions de vieillissement accéléré et ont été pesés périodiquement.

### 2.2.2. Détermination de la température de transition vitreuse (Tg)

Pour évaluer l'impact du vieillissement accéléré sur la microstructure du polymère, des caractérisations par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) ont été effectuées sur de petits échantillons vieillis (~10 mg) avec un appareil Discovery DSC 250 de TA Instruments. Les analyses ont été réalisées en suivant une rampe de température de -10 à 180°C avec une vitesse de chauffage de 2°C/min et une modulation de température (amplitude de 1,5°C avec une période de 60 s).

### 2.2.3. Détermination des propriétés en traction des plaques stratifiées

Des essais de traction dans le sens longitudinal des fibres ont été réalisés selon les normes NF EN ISO 527 et AFGC pour les plaques composites de lin et de carbone [7-8]. Des talons en composite de fibres de verre ont été collés à chaque extrémité des éprouvettes à l'aide d'un adhésif époxy (Fig. 1.).

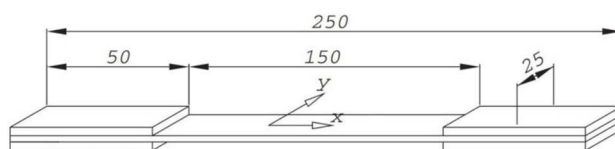


Fig. 1. Dimensions d'une éprouvette de traction

Au lieu de calculer une résistance à la traction en considérant la section réelle de l'échantillon (qui dépend fortement de la qualité d'imprégnation du stratifié), on détermine une force de traction maximale (ou capacité de traction) par unité de largeur des tissus selon (ASTM D7565/D7565M) :

$$\text{Force maximale de traction (kN/m)} = \frac{\text{Charge de rupture}}{\text{Largeur} \times \text{Nombre de couches}}$$

Pour les composites de lin, la raideur à la traction est la pente de la courbe force par unité de largeur / déformation, lorsque la déformation est comprise entre 0,3 et 0,5 %. Pour les composites de carbone, la raideur est calculée pour une déformation comprise entre 0,05 et 0,25 %.

$$\text{Raideur de traction (kN/m)} = \frac{\Delta \text{ force de traction}}{\Delta \text{ déformation}}$$

#### 2.2.4. Détermination de la résistance au cisaillement inter-laminaire

Des essais de flexion 3 points avec appuis rapprochés sont réalisés selon la norme NF EN ISO 14130 [8], [9]. Les échantillons de dimension  $10 \times 20 \text{ mm}^2$  sont découpés dans les plaques de composites stratifiés. Une machine d'essai universelle Instron 5969 équipée d'un dispositif de flexion 3 points est utilisée pour appliquer la vitesse de chargement de 1 mm/min comme conseillé dans la norme. La contrainte de cisaillement inter-laminaire  $\tau$  est calculée suivant la relation:

$$\tau = \frac{3}{4} \times \frac{\text{Charge de rupture}}{\text{Largeur} \times \text{Epaisseur}}$$

#### 2.2.5. Détermination de l'adhérence béton/composite

Des essais d'arrachement ont été réalisés sur les dalles de béton renforcées par les systèmes composites selon les normes EN 1542 et AFGC [8-10]. La couche unique de composites renforçant chaque dalle de béton a d'abord été carottée à l'aide d'une carotteuse cylindrique de 50 mm de diamètre, jusqu'à atteindre une profondeur de 4 mm dans le substrat en béton. Une pastille cylindrique en acier de 50 mm de diamètre a ensuite été collée sur la zone carottée à l'aide d'un adhésif époxy. Enfin, une charge de traction a été appliquée à cette pastille d'acier à une vitesse constante de 0,05 MPa/sec à l'aide d'un dynamomètre Proceq DY-216 jusqu'à rupture de l'interface. Cet essai permet de remonter à la résistance en traction de l'interface, et d'identifier le mode de rupture.

### 3. Résultats et discussions

#### 3.1. Cinétique de sorption

La Fig. 2 montre les courbes de prise de masse des composites de lin sur 12 mois dans les différentes conditions de vieillissement, à l'exception des conditions à 20°C-50% HR, 60°C-50% HR et du vieillissement naturel (VN) pour lesquels aucun changement de masse significatif n'a été observé.

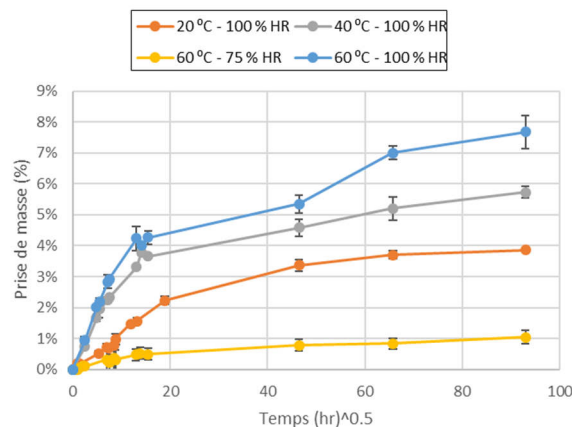


Fig. 2. Prise de masse des composites de lin

Bien que les courbes de sorption présentent des évolutions linéaires initiales, elles n'atteignent pas un plateau à long terme et suivent plutôt une tendance asymptotique. Ce comportement suggère que le processus de sorption n'est pas contrôlé par la diffusion Fickienne pure. De plus, les niveaux d'humidité relative et de température jouent tous deux un rôle majeur dans la cinétique de sorption, car la pente initiale de la courbe augmente significativement lorsque l'un de ces deux facteurs augmente. En outre, de grandes quantités d'eau sont absorbées par les échantillons immergés (jusqu'à 7,4 % de gain de masse après 12 mois de vieillissement à 60°C). Ce résultat montre que les composites de lin sont sujets à une absorption d'eau importante lorsqu'ils sont exposés à une immersion, particulièrement à température élevée. Cette absorption peut donc être un facteur déterminant dans la dégradation des performances mécaniques du stratifié et de l'adhérence composite/support béton si l'environnement de service est humide.

### 3.2. Evolution de la température de transition vitreuse (Tg)

La Fig. 3 montre les valeurs de la température de transition vitreuse (Tg) mesurées par DSC sur les composites de lin vieillis dans différentes conditions pendant 3, 6 et 12 mois (T3, T6, T12). La Tg de l'échantillon exposé aux conditions climatiques (VN) pendant 12 mois est indiquée par la ligne rouge.

La valeur de référence Tg mesurée pour le stratifié non vieilli durci pendant 3 semaines à température ambiante est de  $55,0 \pm 0,5^\circ\text{C}$ . Une Tg aussi faible est caractéristique d'un état de sous-réticulation de la matrice polymère, dans lequel le processus de polymérisation n'a pas été achevé.

D'après la Fig. 3, on constate que la Tg de l'échantillon vieilli à 20°C sous une humidité modérée (50 % HR) augmente lentement avec le temps, sans dépasser 58°C après 12 mois. Ceci est dû à la cinétique de réaction très lente des monomères résiduels à cette température. Une tendance similaire est observée à 20°C en immersion, pour la même raison.

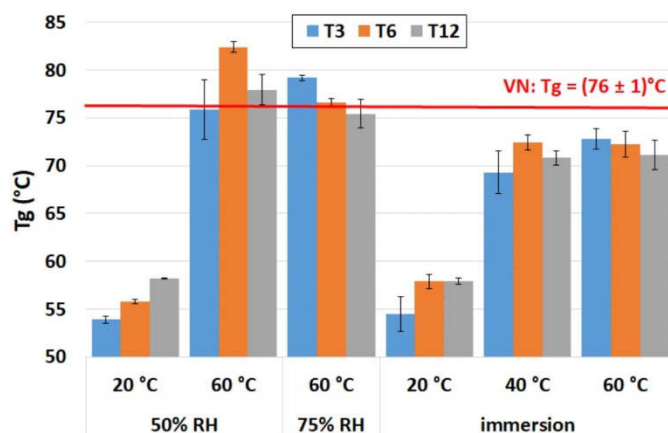


Fig. 3. Évolution de la Tg de composites de lin exposés aux différentes conditions de vieillissement.

L'exposition à 60°C sous une humidité modérée (50 % HR) entraîne d'abord une forte augmentation de la Tg au cours des 6 premiers mois (jusqu'à 82°C), puis une légère diminution au cours des 6 mois suivants. La première augmentation peut être attribuée au processus de post-réticulation de la matrice polymère, car la température élevée facilite la diffusion des monomères n'ayant pas réagi et favorise la réticulation du réseau thermodurcissable. La diminution que l'on observe ensuite pourrait résulter d'une dégradation induite par l'oxydation (à confirmer par des analyses en spectroscopie infrarouge).

Le vieillissement à 60°C et 75% HR entraîne également une forte augmentation de la Tg au cours des 3 premiers mois, suivie d'une dégradation après 6 et 12 mois, qui peut être liée à l'effet de l'humidité

par un processus de plastification de la matrice bio-époxy par les molécules d'eau. Une dégradation induite par l'oxydation pourrait également être impliquée dans cette dégradation.

Concernant les échantillons immergés à températures élevées (40 et 60°C), une augmentation initiale de la Tg est également observée au cours des 3 premiers mois en raison de la post-réticulation (plus la température de vieillissement est élevée, plus l'augmentation est importante). Cependant, cette augmentation reste plus limitée par rapport à celle obtenue à 60°C dans des conditions d'humidité modérée ou intermédiaire (50 et 75 % HR). Ce résultat suggère que, dans un environnement humide, l'évolution de la Tg pourrait être contrôlée à la fois par le processus de post-réticulation et par le phénomène de plastification, qui ont des effets antagonistes sur la Tg de la matrice [11-12]. À plus long terme (12 mois à 40°C et 6 mois à 60°C), on observe à nouveau une diminution de la Tg, suggérant que le phénomène de plastification de la matrice époxy devient prédominant.

La Tg des échantillons exposés pendant 12 mois aux conditions extérieures est d'environ 76°C (proche de la Tg obtenue après 12 mois à 60°C-50 % HR et 60°C-75 % HR), montrant ainsi que les variations de la température extérieure ont permis de poursuivre le processus de réticulation de la matrice polymère (effet de post-cuisson quasi comparable à celui du maintien à haute température).

### 3.3. Evolution des propriétés en traction

#### Composites bio-époxy/lin

Les essais de traction effectués sur des échantillons de composites de lin non vieillis ont fourni des valeurs de référence de 87 kN/m pour la force de traction maximale par unité de largeur et de 7350 kN/m pour la raideur par unité de largeur. Ces valeurs de référence ont ensuite été utilisées pour normaliser les performances résiduelles des échantillons vieillis. La Fig. 4 présente les propriétés de traction résiduelles normalisées pour les composites de lin vieillis dans les différents environnements pendant des durées allant jusqu'à 12 mois.

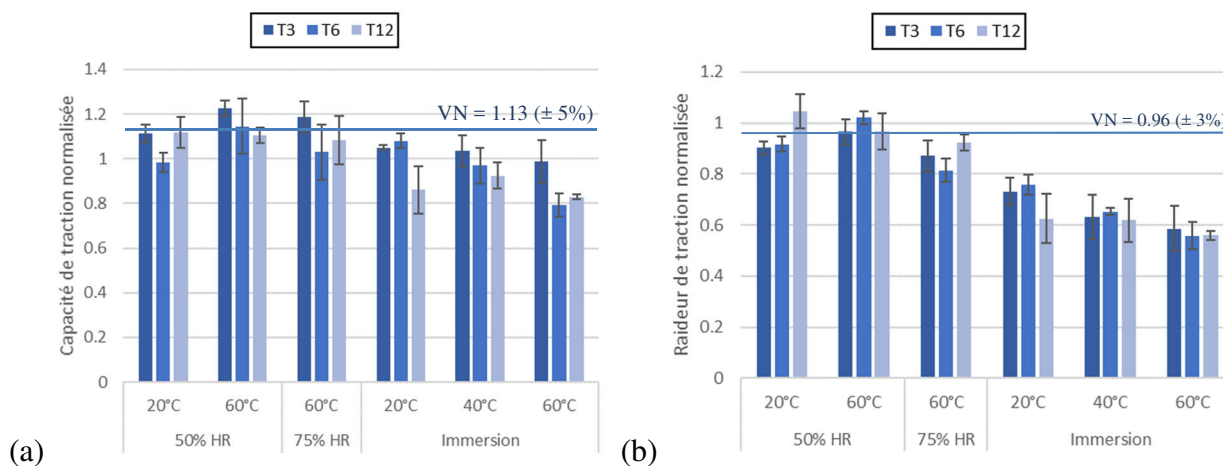


Fig. 4. Evolution des propriétés en traction des composites bio-époxy/lin après vieillissement dans les différents environnements : (a) Capacité de traction et (b) Raideur de traction normalisées.

Les composites de lin ne montrent pas de dégradation significative de leur capacité de traction par unité de largeur pour les conditions non immergées après 12 mois de vieillissement (Fig. 4.a). Une augmentation est même observée pour les échantillons exposés à la température de 60°C, en accord avec le processus de post-cuisson de la matrice bio-époxy mis en évidence par DSC (voir paragraphe 3.2). En revanche, les éprouvettes immergées présentent une réduction de 20 % de leur capacité en traction résiduelle par unité de largeur, avec une cinétique qui dépend de la température de vieillissement (plus la température est élevée, plus la cinétique de dégradation est élevée). Les

échantillons exposés aux conditions extérieures (VN) pendant 12 mois présentent une augmentation de 13 % de la capacité de traction par unité de largeur par rapport à la référence, également attribuée à l'effet de post-cuisson.

D'autre part, la raideur de traction par unité de largeur des éprouvettes immergées est largement affectée après 12 mois de vieillissement, avec des diminutions allant jusqu'à 40 % dans le milieu à 60°C-100 % HR (Fig. 4.b). Ce phénomène est directement lié à la plastification de la matrice polymère induite par l'eau.

Contrairement aux échantillons immergés, les échantillons exposés à l'extérieur pendant 12 mois ne présentent pas de diminution significative de la raideur de traction par rapport aux échantillons de référence (variation de 4 %). Ce résultat suggère que les conditions d'immersion sont très sévères par rapport au vieillissement naturel.

### Composites traditionnels époxy/carbone

Les essais de traction effectués sur les composites de carbone non vieillis ont fourni des valeurs de référence de 506 kN/m pour la force de traction maximale par unité de largeur et de 27620 kN/m pour la raideur par unité de largeur. Ces propriétés sont évidemment très supérieures à celles du composites bio-époxy/lin, compte tenu des performances élevées des fibres de carbone. Comme précédemment, ces valeurs de référence ont été utilisées pour normaliser les performances résiduelles des échantillons vieillis. La Fig. 5 présente les propriétés de traction résiduelles normalisées des composites de carbone jusqu'à 6 mois de vieillissement.

Comme pour les composites de lin, aucune dégradation significative de la capacité de traction n'est observée pour les composites de carbone après 6 mois de vieillissement (Fig. 5.a). Cependant, pour ces composites, la raideur ne semble pas non plus être affectée par les différentes conditions de vieillissement accéléré (Fig.5.b). Il est prévu de poursuivre le programme d'essais sur 2 ans afin de préciser ces tendances.

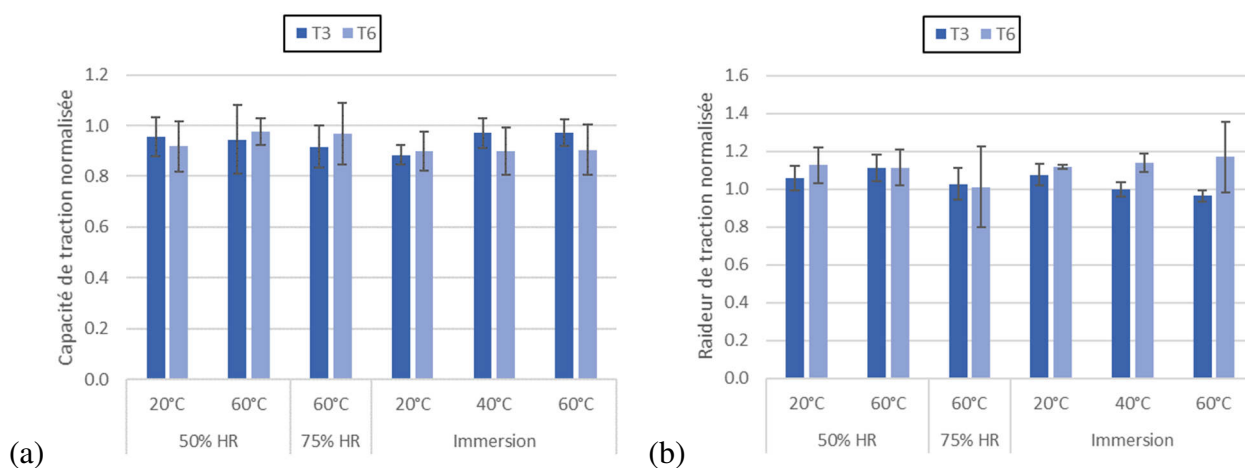


Fig. 5. Evolution des propriétés en traction des composites époxy/carbone après vieillissement dans les différents environnements : (a) Capacité de traction et (b) Raideur de traction normalisées

### **3.4. Evolution de la résistance au cisaillement inter-laminaire**

#### Composites bio-époxy/lin

Des essais de flexion 3 points avec appuis rapprochés ont été réalisés sur des composites de lin non vieillis, fournissant une valeur de référence de  $8,5 \pm 0,8$  MPa pour la résistance initiale au cisaillement inter-laminaire. Des essais ont ensuite été effectués sur des échantillons vieillis et leurs propriétés

résiduelles ont été normalisées par la valeur de référence. La Fig. 6 montre que, comme pour la capacité de traction, aucune diminution significative de la résistance au cisaillement inter-laminaire n'est observée au cours du temps. Une augmentation de performance est même détectée pour les échantillons exposés à 60°C et à 50 ou 75 % HR en raison de la post-réticulation.

Les échantillons exposés à l'extérieur pendant 12 mois présentent une légère diminution de la résistance au cisaillement inter-laminaire (~9 %) par rapport aux échantillons de référence.

### Composites époxy/carbone

Les essais de flexion 3 points effectués sur des échantillons de composites époxy/carbone non vieillis ont fourni une valeur de référence de  $16,6 \pm 1,8$  MPa pour la résistance initiale au cisaillement inter-laminaire. Contrairement aux composites de lin, on n'observe pas d'augmentation de performance pour les échantillons exposés à la température de 60°C, et il ne semble donc pas y avoir d'effet de post-cuisson pour ce système (Fig.6.b). En revanche, les éprouvettes immergées dans l'eau présentent une diminution de performance par rapport à la référence, avec une diminution de l'ordre de 20% pour les échantillons immergés à 60°C.

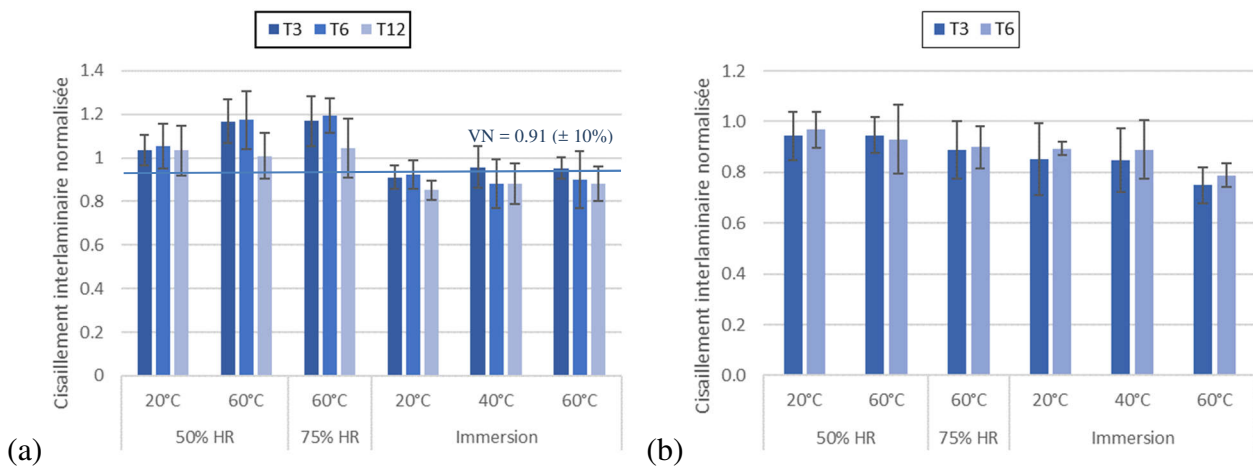


Fig. 6. Evolution de la résistance au cisaillement inter-laminaire normalisée des composites après vieillissement dans les différents environnements : composites (a) bio-époxy/lin et (b) époxy/carbone.

### 3.5. Evolution des propriétés d'adhérence à l'interface béton/composites

#### Composites bio-époxy/lin

Les essais d'adhérence effectués sur des dalles renforcées non vieilles ont donné une valeur de référence de la résistance à l'arrachement égale à  $4,1 \pm 0,3$  MPa et un mode de rupture cohésif dans le béton (Fig. 7.a). Après vieillissement, une diminution significative de la résistance résiduelle est observée pour tous les échantillons, à l'exception de ceux soumis à 20°C-50 % HR (Fig. 7.a). Les échantillons directement immergés dans l'eau sont les plus affectés, avec une réduction allant jusqu'à 60 % dans le cas des échantillons immergés à 60°C. Cette chute des propriétés d'adhérence dans des conditions humides est accompagnée d'un changement de mode de rupture, qui passe d'une rupture cohésive dans le béton (Fig. 8.a) à une rupture mixte (Fig. 8.b) voire à un décollement total du composite (Fig. 8.c). Ce changement de mode de rupture et la réduction de la résistance à l'arrachement peuvent tous deux être attribués à un affaiblissement des liaisons physico-chimiques à l'interface béton/composite et au phénomène de plastification de la matrice sous l'action de l'eau.

Les échantillons exposés à l'extérieur pendant 12 mois montrent une diminution limitée de leur résistance à l'arrachement (environ 14 %), ainsi qu'un mode de défaillance mixte similaire à la Fig. 8.b. Ceci suggère que ce type d'exposition est moins agressif que le vieillissement par immersion.



## Composites époxy/carbone

Les essais d'adhérence effectués sur des dalles de béton renforcées par les composites de carbone et non vieillis ont donné une valeur de référence égale à  $4,9 \pm 0,5$  MPa avec un mode de rupture cohésif dans le béton. Comme précédemment, une diminution significative de la résistance résiduelle à l'arrachement est observée après vieillissement, pour l'ensemble des conditions à l'exception de celle à  $20^{\circ}\text{C}$ -50 % HR (Fig.7.b). Les échantillons directement immergés dans l'eau sont à nouveau les plus affectés, avec une réduction de performance de l'ordre de 60 à 70 % pour ceux immergés à  $60^{\circ}\text{C}$ . De plus, le mode de rupture évolue à nouveau au cours du vieillissement humide, d'une rupture cohésive dans le béton à une rupture mixte (partiellement cohésive dans le béton et partiellement adhésive).

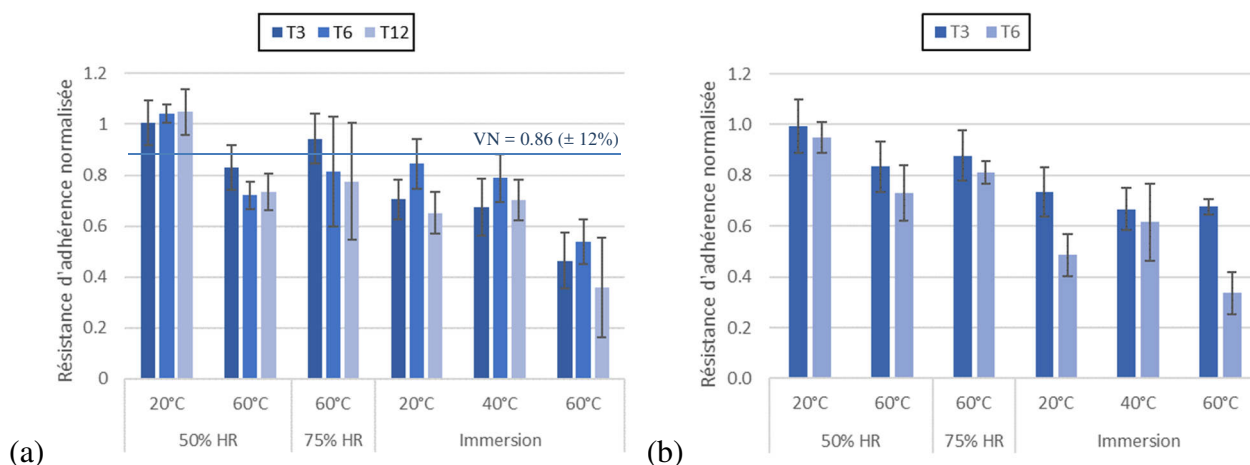


Fig. 7. Evolution de la résistance à l'arrachement normalisée de l'interface béton/composites après vieillissement dans les différents environnements : composites (a) bio-époxy/lin et (b) époxy/carbone.

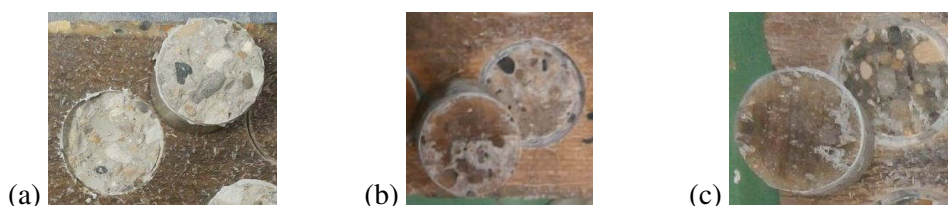


Fig. 8. Modes de rupture de l'interface béton/composites (a) cohésive dans le béton (b) rupture mixte (c) décollement du composite

## 5. Conclusions

Cet article présente les premiers résultats d'une étude de durabilité menée sur des composites bio-époxy/lin et époxy/carbone soumis à diverses conditions de vieillissement accéléré (6 combinaisons différentes de température et d'humidité relative) ainsi qu'à un vieillissement naturel. À ce stade du programme d'essais, l'évolution des propriétés de traction, de cisaillement inter-laminaire et de la résistance d'adhérence sur support béton a été suivie sur une période de 12 mois pour les composites bio-époxy-lin et 6 mois pour les composites époxy/carbone. D'autres caractérisations ont également été menées pour évaluer les cinétiques de sorption d'eau et les évolutions de  $T_g$  de ces systèmes lors des vieillissements.

Concernant les composites de carbone, les essais de traction ont montré que les différents vieillissements accélérés induisent des effets limités sur les propriétés en traction. En revanche, les essais de flexion 3 points à appuis rapprochés mettent en évidence une diminution de la résistance au cisaillement inter-laminaire pour les échantillons immergés dans l'eau. Enfin, une diminution significative des propriétés d'adhérence à l'interface béton/composite est observée après vieillissements accélérés, ainsi qu'un changement de mode de rupture pour les échantillons immergés.

Concernant les composites de lin, les essais de traction ont montré que le vieillissement sous humidité modérée (50% ou 75% HR) induit des effets limités sur la capacité en traction. Une légère augmentation est même observée à 60°C-50% HR et 60°C-75% HR, en raison de la post-réticulation de la matrice polymère confirmée par les analyses DSC. Par contre, les échantillons immergés dans l'eau pendant de longues périodes subissent des baisses significatives de leurs capacité et raideur en traction. Les réductions les plus importantes sont obtenues après 12 mois d'immersion à 60°C, avec des baisses de 20 % et 50 % pour la capacité et la raideur, respectivement.

En ce qui concerne la résistance au cisaillement inter-laminaire, une augmentation due à un effet de post-réticulation a également été observée pour les composites exposés à 60°C avec des niveaux d'humidité relative modérés (50 et 75% HR). Enfin, une nette dégradation de l'adhérence béton/renfort est observée pour les dalles renforcées par composites de lin ou de carbone soumises à des immersions, avec un changement dans les modes de rupture, d'une rupture de béton cohésive à une rupture mixte (béton + pelage partiel du composite) ou à un décollement du stratifié composite.

Un résultat important mis en évidence par cette étude est que l'exposition à l'environnement extérieur (vieillissement naturel) sur une période de 12 mois induit peu d'effets sur les propriétés en traction des composites de lin (réduction de 14 % de la capacité en traction) et des effets limités sur les propriétés d'adhérence entre le stratifié et le support béton. De plus, ce vieillissement naturel permet d'achever la réticulation de la matrice comme en témoignent les analyses DSC.

En fin de compte, le vieillissement naturel se révèle bien moins sévère que les vieillissements accélérés en milieu humide. Néanmoins, les essais d'exposition à l'extérieur se poursuivront dans les quatre prochaines années afin de confirmer cette tendance sur le long terme.

## Remerciements

Les auteurs remercient l'Agence Nationale de la Recherche pour le financement du projet MICRO (contrat ANR-15-CE22-0007-04 - Matériaux Innovants Composites pour la réparation d'Ouvrages).

## Références

- [1] L. Yan, N. Chouw, and K. Jayaraman, "Flax fibre and its composites - A review," *Compos. Part B Eng.*, 2014.
- [2] P. Wambua, J. Ivens, and I. Verpoest, "Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics?," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 63, no. 9, pp. 1259–1264, Jul. 2003.
- [3] N. Cuinat-guerraz, "Environmental resistance of flax/bio-based epoxy and flax/polyurethane composites manufactured by resin transfer moulding," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 88, pp. 140–147, 2016.
- [4] A. Le Duigou, P. Davies, and C. Baley, "Interfacial bonding of Flax fibre/Poly(l-lactide) bio-composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 70, no. 2, pp. 231–239, Feb. 2010.
- [5] A. Hallonet, "Développement et caractérisation d'un matériau composite à base de fibres de lin : application au renforcement de structures en béton par collage externe," 2016.
- [6] D. Scida, M. Assarar, C. Poilâne, and R. Ayad, "Influence of hygrothermal ageing on the damage mechanisms of flax-fibre reinforced epoxy composite," *Compos. Part B Eng.*, vol. 48, pp. 51–58, May 2013.
- [7] "ISO 527-4:1997 - Plastics -- Determination of tensile properties -- Part 4: Test conditions for isotropic and orthotropic fibre-reinforced plastic composites."
- [8] Association Française de Génie Civil (AFGC), *Réparation et renforcement des structures en béton au moyen des matériaux composites, Bulletin Scientifique et Technique de l'AFGC*. 2011.
- [9] "EN ISO 14130:1997 - Fibre-reinforced plastic composites -- Determination of apparent interlaminar shear strength by short-beam method."
- [10] "EN 1542:1999 - Products and systems for the protection and repair of concrete structures. Test methods. Measurement of bond strength by pull-off."
- [11] K. Benzarti, S. Chataigner, M. Quiertant, C. Marty, and C. Aubagnac, "Accelerated ageing behaviour of the adhesive bond between concrete specimens and CFRP overlays," *Constr. Build. Mater.*, vol. 25, no. 2, pp. 523–538, 2011.
- [12] M. Quiertant, K. Benzarti, J. Schneider, F. Landrin, M. Landrin, and F. Boinski, "Effects of Ageing on the Bond Properties of Carbon Fiber Reinforced Polymer/Concrete Adhesive Joints: Investigation Using a Modified Double Shear Test," *J. Test. Eval.*, vol. 45, no. 6, 2017.