

# Mise en évidence de phénomènes de mécano-sorption dans la mise en œuvre d'un composite à fibre végétales

## *Occurrence of mechanosorption phenomena during the processing of a plant fiber composite*

GAUD Benjamin<sup>1</sup>, CELINO Amandine<sup>1</sup>, FREOUR Sylvain<sup>1</sup> et PERON Mael<sup>1</sup>

1 : GeM, UMR CNRS 6183  
Nantes Université, Ecole Centrale Nantes  
58 rue Michel Ange, F-44600 Saint-Nazaire, France  
e-mails : benjamin.gaud@univ-nantes.fr et mael.peron@univ-nantes.fr

### Résumé

L'absorption hygrique des fibres végétales dans les composites biosourcés provoque un gonflement et une plastification des différents polymères (matrice + fibres) qui modifient leurs propriétés mécaniques et celles du composite associé. Ainsi, un optimum de la teneur en eau initiale des fibres a pu être trouvé aux alentours de 7 % [8]. Cette teneur en eau, critique pour la réalisation de pièces composites à fibres de lin, est sensible à la mise sous vide et aux variations de température. Une désorption significative des fibres a été constatée lors d'une mise sous vide en caisson solide, mais n'est pas observée lors d'un compactage de pré-infusion classique, suggérant l'existence d'un possible phénomène de mécano-sorption. De plus, il a été constaté qu'une montée en température à humidité relative constante d'un composite lin-époxy provoque une désorption en eau de ce dernier, alors que ce phénomène est absent pour des fibres seules. Ceci révèle un autre possible effet de mécano-sorption potentiellement dû à la dilatation thermique des différents constituants de ce composite. Ainsi, les paramètres de pression, de température et d'humidité relative sont capitaux pour maîtriser la teneur en eau, et donc la qualité de la pièce lors de sa mise en forme.

### Abstract

The hygric absorption of plant fibers in biobased composites leads to swelling and plasticization of the various polymers constituting the composite (matrix + fibers). Indeed, moisture impacts their mechanical properties and those of the associated composite. An optimum initial water content for the fibers has been found to be around 7% [8]. This water content, which is critical for the production of flax fiber composite, is sensitive to vacuum and temperature changes. Significant moisture desorption was observed in fibers when vacuum is applied in a solid-boxing. However, this desorption is not observed during conventional pre-infusion compaction, pointing the existence of a possible mechano-sorption phenomenon. Furthermore, it has been found that the temperature raise of a flax-epoxy composite at constant relative humidity causes water desorption. Nevertheless, this phenomenon is absent for fibers alone. This points to another possible mechano-sorption effect, potentially due to thermal expansion of the various constituents of the composite. In this way, the parameters of pressure, temperature and relative humidity are crucial to control water content, and hence part quality during forming.

**Mots Clés :** biocomposites, sorption hydrique, teneur en eau, mise en forme de composite, paramètres de mise en forme  
**Keywords :** biocomposites, water sorption, water content, composite forming, cycle forming parameters

## 1. Introduction

Au vu des enjeux environnementaux attendus par la société civile visant à une moindre consommation des ressources non-renouvelables ainsi qu'à la décarbonation de nos industries, la filière des composites à fibres végétales se développe fortement ces dernières années [1]. Néanmoins, quelques verrous retardent leur usage pour des applications structurelles. En effet, des phénomènes thermiques, chimiques et hygriques se produisant lors de la mise en forme de ces composites peuvent provoquer des aléas de fabrication potentiellement importants [2]. La prise en compte de l'humidité y est notamment cruciale, d'autant plus qu'il s'agit d'un phénomène souvent négligeable dans les composites à fibres synthétiques usuels du fait de leur caractères hydrophobes.

Les fibres végétales comme le lin ont une importante affinité avec l'eau à cause du caractère polaire de leur constituants majoritaires : la cellulose amorphe, l'hémicellulose et la lignine [3]. L'eau a pour effet de faire gonfler les fibres ainsi que de plastifier ces polymères naturels, provoquant une baisse des capacités mécaniques [4-5]. Dans le cas d'un composite en présence d'eau, cette baisse des propriétés mécaniques des fibres est couplée à une plastification de la matrice polymérique et à une baisse de la qualité de la réticulation [6]. De plus, le gonflement des fibres au sein de la matrice pendant la mise en forme, provoque une apparition de contraintes résiduelles (irréversibles), amenant des défauts microstructuraux et dimensionnels [7]. Pour toutes ces raisons, il est convenu dans la littérature qu'un conditionnement préalable des fibres à 50% d'humidité relative (HR), amène le meilleur compromis à la fois mécanique et structural pour une pièce composite au cours de sa vie en service [8].

Ce conditionnement des fibres apparaît optimal pour garantir une production de pièces de qualité technique. Il serait donc pertinent d'investiguer l'évolution de la teneur en eau de la pièce lors du procédé de fabrication, notamment lors du tirage au vide (compactage) et des variations de température (cuisson et post-cuisson). Une étude a quantifié les variations de teneur en eau dans la matière au cours d'un procédé d'impression 4D pour un composite lin/PBAT [9]. Une autre, mesurant la teneur en eau de la pièce à différentes étapes d'un procédé de thermocompression, a aussi été réalisée [2]. Ces dernières ont été effectuées en fonction de la température, mais les paramètres de fabrication (temps, température, pression) sont éloignés du procédé d'infusion sous bêche à vide qui concerne le présent travail. De plus, ces études de la littérature ne s'intéressent qu'aux propriétés du matériau final. Or, un impact des paramètres de fabrication demanderait d'affiner la teneur en eau initiale des fibres en fonction de ces paramètres pour obtenir l'optimum de teneur en eau recherché.

Nous nous intéresserons donc à l'influence de plusieurs facteurs extérieurs sur la teneur en eau d'une préforme fibreuse ou de son composite associé. Le premier facteur investigué est la mise sous vide de la préforme fibreuse lors de l'étape de compactage. Dans des conditions industrielles, cette étape peut durer de 30 min à plusieurs jours en fonction des dimensions, de la criticité de la pièce mais aussi des paramètres humains. De plus, bien que la relation entre l'humidité relative et la teneur en eau des fibres de lin et de leur composites soit bien documentée dans la littérature [10,11], l'effet d'un changement de température à humidité relative constante reste inexploré. Ce phénomène, susceptible de se produire lors de cycles de cuisson ou de post-cuisson, n'est mentionné dans aucune référence. Nous investiguerons donc dans cette étude, l'effet d'un éventuel couplage entre la température et l'humidité relative sur la teneur en eau.

## **2. Matériaux et méthodes :**

Pour ces travaux, nous utilisons une préforme sèche de fibres unidirectionnelles de grammage 110g/m<sup>2</sup> de chez Eco Technilin sans fil de guipage, afin d'éviter tout phénomène transverse. La matrice est la résine epoxy Infugreen 810 de chez Sicomin couplée avec le durcisseur extra lent SD4771 polymérisant à température ambiante. La méthode de mise en forme choisie est l'infusion sous vide à 500 mbar car étant communément utilisée pour la réalisation de pièces composites à fibres végétales. Le cycle thermique choisi comprend une cuisson de 24 heures à température ambiante suivi d'une post-cuisson de 16 heures à 60°C, comme préconisé par le fournisseur de la résine.

### **2.1 Impact du compactage**

Pour étudier l'impact du compactage sur la teneur en eau de la préforme fibreuse, deux expériences différentes ont été réalisées.

La première a pour but d'investiguer le comportement hydrique des fibres de lin dans un environnement sous vide. Pour ce faire, nos échantillons sont sept préformes de lin de 8 couches conditionnées à l'air ambiant et pesant en moyenne 10g. Ces échantillons ont été empilés dans un pot à vide à température ambiante sous une pression fixée (500 mbar ou 100 mbar en pression absolue) (Fig. 1.a). Les préformes sont ensuite sorties progressivement sans remise puis pesées à l'aide d'une balance de précision à 0,1 mg au cours du temps. Toutes les préformes sont ensuite séchées pendant deux jours à 101 °C, puis pesées dans le but de remonter à leur teneur en eau.

La deuxième expérience investigate la teneur eau des fibres sous vide avec un procédé d'habillage classique représenté en Fig. 1c, comportant un tissu d'arrachage, un tissu drainant et une bâche de tirage au vide. Pour pouvoir avoir une masse de lin suffisante par rapport à l'habillage, 20 couches de lin composent la préforme. Les préformes ont été conditionnées à 50 et 90% HR à 20°C jusqu'à saturation après séchage pendant 2 jours à 101°C. Elles ont ensuite été placées dans la configuration d'habillage avec un tirage au vide continu sous 20°C et 500 mbar. Deux dimensionnements ont été testés : une préforme de 30x30 cm (échantillon 2) pesant 188g à sec et une de 10x30 cm (échantillon 3, Fig. 1.b) d'environ 78g.

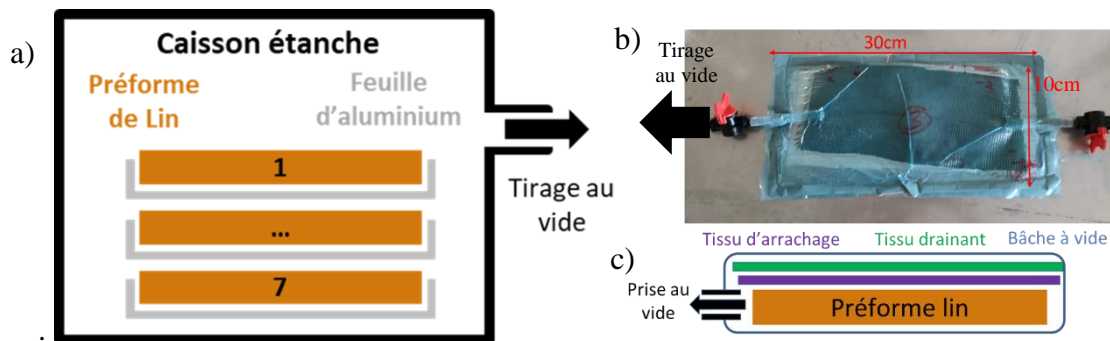


Figure 1 : a) Schéma du caisson de la première expérience. b) Photographie de l'aspect général des échantillons utilisés pour l'expérience n°2. c) Schéma de la configuration d'habillage utilisée dans l'expérience n°2

## 2.2 Impact de la température sur la teneur en eau

Pour étudier l'effet combiné de la température (T) et de l'humidité relative (HR) sur la teneur en eau d'un composite et d'une préforme fibreuse nous avons réalisés des expériences préliminaires. Pour ce faire, nous avons appliqués plusieurs configurations du couple (T, HR) sur nos échantillons lors d'essais de DVS (Dynamical Vapor Sorption). Cet appareil permet de réaliser un suivi gravimétrique continu d'un échantillon en imposant un environnement à T et HR fixés. En faisant l'hypothèse que l'évolution de la masse n'est due qu'au phénomène de sorption et de désorption hygrique, il est possible de remonter à la teneur en eau de l'échantillon testé. Pour ce faire, nous avons d'abord séché les échantillons à 0% HR et 85 °C jusqu'à stabilisation de la masse.

N° de partie	1		2		3		4		5		6	
Conditions environnementales	T (°C)	HR (%)	T (°C)	HR (%)	T (°C)	HR (%)	T (°C)	HR (%)	T (°C)	HR (%)	T (°C)	HR (%)
Préforme fibreuse	85	0	25	50	25	85	60	90	60	50	25	0
Composite associé	85	0	20	80	60	80	80	60	80	20	20	20

Tableau 1 : Conditions environnementales testées pour les expériences de DVS

Pour la préforme fibreuse, nous avons choisi de réaliser deux isothermes successifs en modifiant progressivement l'humidité relative. En premier lieu, il a été appliqué une montée en HR (zone 2 et 3) pour voir l'effet d'une augmentation d'humidité relative. L'isotherme a ensuite été élevé à 60 °C et l'humidité relative progressivement diminuée (zone 4 et 5). Enfin, la température a été de nouveau fixée à 25°C avec 0% HR, pour détecter la présence d'une éventuelle hystérésis (zone 6).

Pour l'échantillon composite nous avons d'abord choisi de provoquer une sorption hygrique en augmentant l'humidité relative à température constante (zone 2) pour travailler avec une teneur en eau suffisante. La température a ensuite été augmentée progressivement à humidité relative constante (zone 3 et 4). Nous avons ensuite diminué l'humidité relative (zone 5), avant de remettre l'échantillon à température ambiante (zone 6). Les données explicitées ci-dessus sont à retrouver dans le Tableau 1. Le but de ces expériences est de découpler et de quantifier les impacts de la température et de l'humidité relative sur la teneur en eau d'une préforme fibreuse et de son composite associé.

### 3. Résultats :

#### 3.1 Impact du compactage

Lors de la première expérience sous vide, une désorption rapide des fibres sous vide a pu être constatée (Fig. 2a). Cette désorption est d'autant plus marquée que la dépression est forte. Par manque de points expérimentaux, l'allure générale de la courbe ne peut pas être précisément explicitée même si elle pourrait être théorisée comme étant Fickienne. C'est dans cette configuration que l'on analysera les courbes obtenues, en exprimant la teneur en eau en fonction de  $t^{1/2}$  (en heures<sup>1/2</sup>). Pour une préforme initialement à 12% de teneur en eau, obtenue sous conditions ambiantes, les expériences montrent une désorption très importante pour 100 mbar (perte d'environ – 8 % de teneur en eau) en 16 heures sans assurance d'avoir atteint l'asymptote. A 500 mbar, la pente de désorption est moins marquée et l'asymptote n'est que peu probablement atteinte, néanmoins la désorption n'est pas négligeable (- 2 % de teneur en eau) pour 4h de mise sous vide.

A l'inverse, lors de la mise en habillage, la désorption des fibres est négligeable comme le montre la Fig. 2b. Elle est même nulle sous 500 mbar pour des durées comprises entre 100 et 250 heures. Il ne semble pas y avoir d'incidence de la taille de la préforme ou du conditionnement effectué sur les fibres. La seule légère désorption observée étant pour la configuration 3, avec un conditionnement des fibres à 90 % d'humidité relative. Cette faible sensibilité au tirage au vide surprend car l'on pourrait s'attendre à ce que l'ajout d'une pression mécanique due à la bêche d'infusion accentue l'effet de désorption, or elle joue plutôt un rôle d'entrave. Les explications envisagées pour expliquer ce phénomène sont une potentielle coupure des canaux de diffusion hygrique due à la pression de la bêche ou une absorption de l'eau désorbée des fibres dans les différents composants de l'habillage, mais ces hypothèses seraient à vérifier, notamment via des mesures massiques.

b)

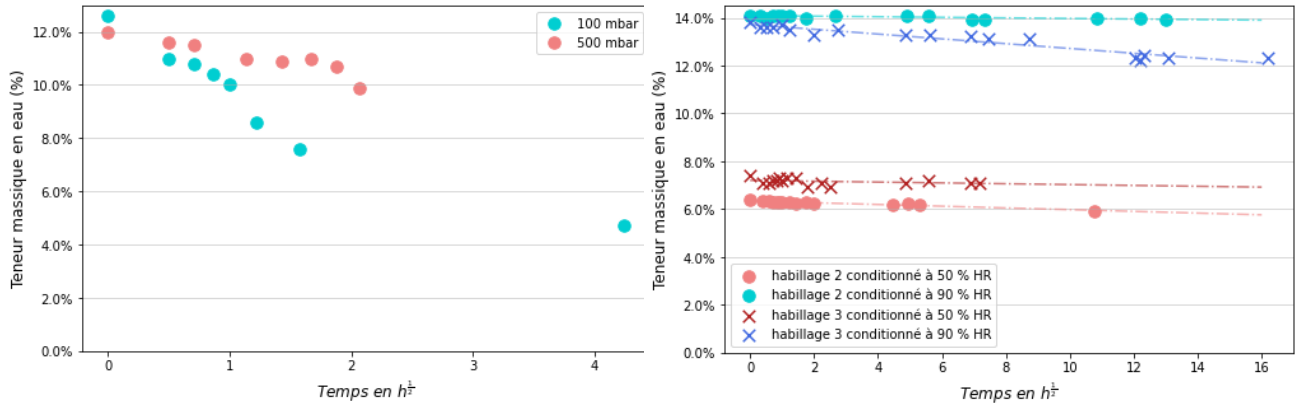


Figure 2 : Teneur en eau des fibres sous dépressurisation selon  $h^{1/2}$  a) sans habillage b) à 500mbar dans un habillage d'infusion

### 3.2 Impact de la température sur la teneur en eau des fibres et du composite associé

Pour les expériences réalisées en DVS, les résultats obtenus pour le lin sont préliminaires et présentés en Fig.3.a. Sur ce graphique, on observe que la température ne semble pas affecter la teneur en eau des fibres à HR équivalent. En effet, il est possible de constater qu'il n'y a pas de différences entre les conditions 2 et 5 et seulement un léger écart entre les conditions 1 et 6 qui possèdent deux à deux une humidité relative similaire. Ces légers écarts observés peuvent être dus à une hystérésis de désorption ou à un léger effet de la température.

Les résultats obtenus pour le composite lin/époxy sont présentés sur la Fig.3.b. Si l'humidité relative reste le paramètre avec le plus d'impact sur la teneur en eau, il est possible de voir qu'à humidité relative égale, la teneur en eau du composite baisse avec la montée en température. A 80 % d'humidité relative, le passage de 20 à 60 °C (zones 2 et 3) fait diminuer rapidement et quantitativement la teneur en eau de - 0.75%. De même, le passage à 80 °C provoque une diminution rapide de - 0,7% de la masse totale. A l'inverse, une baisse de la température comme lors du passage de la zone 5 à la zone 6, relance le processus de sorption. Nous faisons l'hypothèse que ce phénomène, présent dans le composite et absent (ou très léger) pour les fibres seules, est dû au confinement des fibres par la matrice et à l'hétérogénéité de la dilatation thermique de ces deux constituants. Leur dilatations différentielles provoque des contraintes radiales en compression sur les fibres qui amène un potentiel « essorage » de l'eau libre présente dans ces dernières.

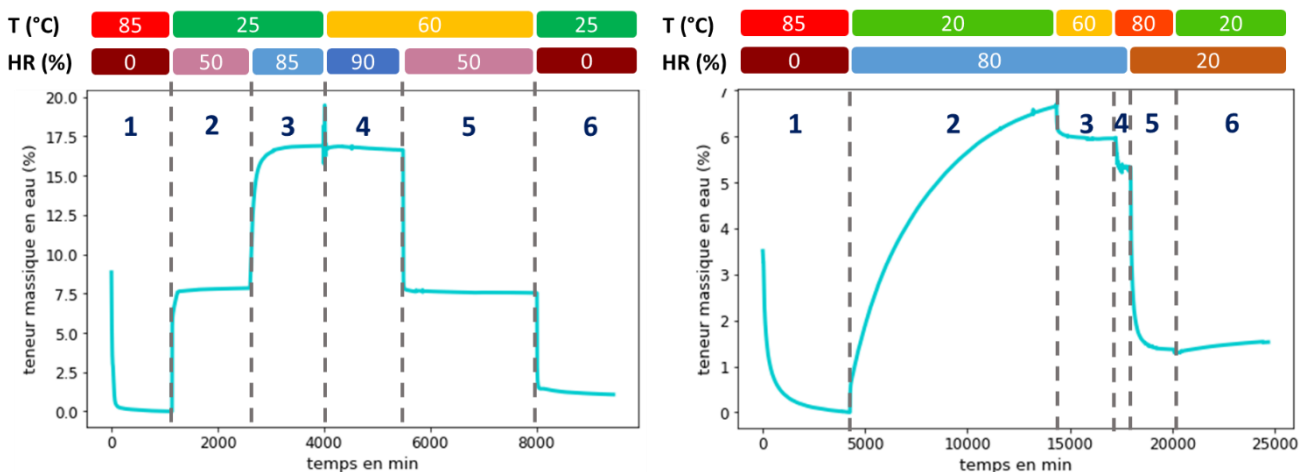


Figure 3 : Courbe évolutive de la masse en fonction des paramètres thermiques et hygriques extérieurs pour : a) des fibres de lin b) un composite lin/époxy

#### 4. Conclusions et perspectives

Cette étude présente des observations de possibles phénomènes de mécano sorption des fibres de lin en fonction de leur environnement. Tout d'abord, il a été démontré que le phénomène de désorption constaté lors de la mise sous vide des fibres dans un caisson solide n'était pas observé dans une configuration d'habillage classique sous bâche à vide. Ceci possiblement dû au fait de la pression exercée par l'air ambiant sur la bâche. Les explications proposées à ce phénomène sont un blocage des canaux de diffusion hygrique entre les fibres ou une reprise par les éléments d'habillage de l'eau sortie par les fibres. Il a aussi été démontré que l'augmentation de la température à humidité constante provoquerait une diminution très rapide de la teneur en eau dans le composite. A l'inverse, aucun changement significatif n'a pu être constaté dans le cas des fibres seules. Cela peut être expliqué par la dilatation thermique du renfort et de la matrice, venant mettre en compression radiale les fibres et amenant un phénomène d'essorage qui diminue leur teneur en eau.

Ainsi, cette étude montre l'existence de désorptions pouvant se produire lors de la mise en forme d'une pièce composite renforcée par des fibres végétales. Ce phénomène peut avoir lieu au cours de l'étape de compactage avant l'infusion, ou bien durant l'étape de post cuisson, où l'eau serait expulsée du fait de l'élévation de la température. Pour la suite il sera intéressant de caractériser plus précisément ces phénomènes pour mettre en œuvre un matériau composite à fibres de lin.

Pour ce faire, nous continuerons les essais sous vide dans l'optique de pouvoir comparer efficacement nos deux expériences. Nous commencerons tout d'abord par réaliser un conditionnement des fibres dans l'expérience n°1, similaire à celle de l'expérience n°2, puis nous augmenterons le nombre de mesures afin de vérifier si la diffusion observée est du type fickienne. Nous obtiendrons aussi sa valeur à saturation. Dans le cas de la deuxième expérience, nous recommencerons nos essais mais sous une pression de 100 mbar pour caractériser l'impact de la pression sur la diffusion. Nous réaliserons aussi un essai en température pour constater un éventuel impact de cette dernière sur la cinétique de diffusion.

Pour l'impact de la température sur la teneur en eau de notre pièce composite, nous analyserons des montées et des descentes en humidité relative pour plusieurs conditions isothermes en DVS. Les valeurs obtenues seront ensuite comparées entre elles pour avoir un lien entre la teneur en eau du matériau et le couple température/humidité relative.

#### Remerciements

Cette recherche a été financée en tout ou partie par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) au titre du projet « ANR-22-CE43-0020-01 ».

#### Références

- [1] O. Akampumuza, P.M. Wambua, A. Ahmed, W. Li, X. Qin, 2017. « Review of the applications of biocomposites in the automotive industry », *Polymer Composites* 38, 2553–2569. <https://doi.org/10.1002/pc.23847>
- [2] A. Le Duigou, J. Merotte, A. Bourmaud, P. Davies, K. Belhouli, C. Baley, 2017. « Hygroscopic expansion: A key point to describe natural fibre/polymer matrix interface bond strength », *Composites Science and Technology* 151, 228–233. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2017.08.028>
- [3] L. Yan, N. Chouw, K. Jayaraman, K., 2014, « Flax fibre and its composites – A review », *Composites Part B: Engineering* 56, 296–317. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.08.014>
- [4] M. Abida, « Comportement hygroscopique et couplage hygromécanique dans les composites lin / époxy: approche expérimentale multi-échelle et modélisation », Ph.D thesis, Université de Caen Normandie, 2018
- [5] A. Céline, S. Fréour, F. Jacquemin, P. Casari, 2014. « The hygroscopic behavior of plant fibers: a review », *Frontiers in Chemistry*. 1. <https://doi.org/10.3389/fchem.2013.00043>
- [6] J.B. Jouenne, « Etude de l'influence de fibres naturelles sur la cinétique de réticulation de résines bio-sourcées », Ph.D. thesis, Université de Caen Normandie, 2023.

- [7] A. Moudood, W. Hall, A. Öchsner, H. Li, A. Rahman, G. Francucci, 2019. « Effect of Moisture in Flax Fibres on the Quality of their Composites », *Journal of Natural Fibers* 16, 209–224. <https://doi.org/10.1080/15440478.2017.1414651>
- [8] T. Cadu, M. Berges, O. Sicot, V. Person, B. Piezel, L. Van Schoors, V. Placet, S. Corn, R. Léger, L. Divet, P. Jenny, S. Fontaine, 2018. « What are the key parameters to produce a high-grade bio-based composite? Application to flax/epoxy UD laminates produced by thermocompression », *Composites Part B: Engineering* 150, 36–46. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.04.059>
- [9] M. Josselin, N. Di Cesare, M. Castro, T. Colinart, F. Scarpa, A. Le Duigou, 2024. « Hygro-thermal coupling on 4D-printed biocomposites as key for meteosensitive shape-changing materials », *Virtual and Physical Prototyping* 19, e2335233. <https://doi.org/10.1080/17452759.2024.2335233>
- [10] A. Céline, O. Gonçalves, F. Jacquemin, S. Fréour, 2014. « Utilisation de la spectrométrie infrarouge pour une quantification rapide du taux d'humidité dans des fibres végétales », *Revue des Composites et des Matériaux Avancés* 24, 81–95. <https://doi.org/10.3166/rcma.24.81-95>
- [11] Z. El Achem, « Effects of water absorption on the behavior of composite materials reinforced with natural fibers: characterization and numerical simulation » ; Ph.D thesis, Nantes Université, 2021.