



HAL
open science

Impact de vieillissement hygrothermique de composites polyéthylène/ fibres courtes de lin sur les propriétés mécaniques

Hajer Rabii, Laetitia van Schoors, Marielle Gueguen, Peter Davies

► **To cite this version:**

Hajer Rabii, Laetitia van Schoors, Marielle Gueguen, Peter Davies. Impact de vieillissement hygrothermique de composites polyéthylène/ fibres courtes de lin sur les propriétés mécaniques. Conférence Matériaux 2014 - Colloque Ecomatériau, Nov 2014, Montpellier, France. hal-01144552

HAL Id: hal-01144552

<https://enpc.hal.science/hal-01144552>

Submitted on 21 Apr 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Impact de vieillissement hygrothermique de composites polyéthylène/ fibres courtes de lin sur les propriétés mécaniques

Hajer Rabii ^{*1}, Laetitia Van Schoors¹, Marielle Gueguen¹, Peter Davies²

¹ Département Matériaux et Structure (MAST), Ifsttar, Marne La Vallée, France

² Laboratoire Comportement de Structures en Mer (LCSM), Ifremer, Centre de Bretagne, France

* hajer.rabii@ifsttar.fr

RESUME : Ce travail vise à évaluer les performances mécaniques et le vieillissement de composites biosourcés en vue d'une utilisation potentielle de ces matériaux prometteurs dans des applications liées au bâtiment. Des composites en polyéthylène / fibres de lin ont été soumis à des cycles longs humidité / séchage à 30°C. Les cinétiques de sorption révèlent une augmentation du coefficient de diffusion et de la masse à saturation avec le taux de fibres. Ces évolutions sont limitées en présence d'un agent compatibilisant qui assure une meilleure adhésion fibre matrice. Ces évolutions sont irréversibles après désorption, ce qui peut indiquer une hydrolyse partielle des fibres ou une dégradation de l'interface. Les propriétés mécaniques aux différents temps de vieillissement présentent une évolution réversible des modules élastique, mais le vieillissement dans ces conditions hygrothermiques ne semble pas avoir d'effet sur la contrainte et l'allongement à la rupture.

ABSTRACT: This work aims to evaluate the mechanical performance and aging behavior of bio-based composites for a potential use of these promising materials in the building related applications. Composite based on polyethylene and flax fibers were subjected to long cycles of moisture / drying at 30°C. Sorption kinetics shows an increase of diffusion coefficient and mass saturation with the fiber content. These evolutions are limited in the presence of a compatibilizer which ensures a better fiber matrix adhesion. These evolutions are irreversible after desorption, which may indicate a partial hydrolysis of fibers or a degradation of the interface. The mechanical properties at different aging time indicate a reversible trend for the elastic modulus, but it appears that is no effect on the stress and elongation at break under these ageing conditions.

MOTS-CLÉS : vieillissement, composites, fibres de lin, cinétiques de sorption, propriétés mécaniques.

KEYWORDS: ageing, composites, flax fibre, sorption kinetics, mechanical properties

1. INTRODUCTION

Comparé aux fibres minérales de verre ou de carbone, les fibres naturelles présentent plusieurs avantages tels qu'un faible coût, une faible densité, une résistance et un module spécifiques élevés ainsi que leur biodisponibilité et leur biodégradabilité. Ceci explique le développement croissant des composites à matrice organique renforcés par des fibres naturelles pour diverses applications liées au bâtiment et au transport. Cependant, ces composites présentent des limites à leur utilisation liées notamment au caractère hydrophile des fibres naturelles (Arbelaiz et al., 2005 ; Dhakal et al., 2007 ; Beg et Pickering, 2008).

La sensibilité des composites à fibres naturelles au taux d'humidité du milieu environnant rend nécessaire l'analyse de leur comportement mécanique sous l'action d'un vieillissement à long terme notamment pour des applications extérieures (Arbelaiz et al., 2005). Une revue de la littérature (Beg et Pickering, 2008; Dhakal et al., 2007 ; Arbelaiz et al., 2005 ; Joseph et al., 2002) a permis de montrer que le caractère hydrophile des fibres favorise la pénétration et la diffusion de l'eau à l'interface. Les mécanismes de diffusion de l'eau à l'intérieur des composites a été étudiée par ces auteurs. D'une manière générale, ils s'accordent sur le rôle des fibres qui sont constituées de molécules contenant de nombreux groupements hydroxyles (-OH) responsables des interactions avec les molécules d'eau via des liaisons hydrogènes. D'après Dhakal et al. (2007), les molécules d'eau pénètrent par capillarité à l'intérieur des lacunes entre les chaînes du polymère et à l'interface. Ces molécules vont former des liaisons hydrogènes avec les groupements hydroxyles de la cellulose. L'eau agit donc comme un plastifiant ce qui entrainerait le gonflement des fibres naturelles (Chevali et al., 2010). La pénétration de l'eau s'accompagne par des chutes de propriétés, vérifiée par différents auteurs (George et al., 1998 ; Le Duigou et al., 2009 ; Al Maadeed et al., 2014 ; Arrakhiz et al. 2013 ; Dhakal et al. 2007), ce qui peut générer des dégradations irréversibles responsables de la chute des performances globales des matériaux. Ainsi, la connaissance de la cinétique d'absorption est indispensable pour évaluer la performance dans le temps de ces matériaux.

L'objectif de cet article est d'étudier l'influence de cycles humidité séchage à 30°C de composites PE/fibre de lin sur leurs caractéristiques mécaniques. Le choix de cette température de vieillissement s'est basé sur l'étude bibliographique (Joseph et al., 2002).

2. MATERIAUX ET METHODES

2.1. MATERIAUX

Tous les échantillons ont été fournis par le Groupe Depestele. Il s'agit d'un polyéthylène basse densité LD600 BA, et des composites PEbd renforcés par 10%, 20%, 40% en masse de fibres courtes de lin. Certains composites à 40% en masse de fibres de lin contiennent 1% en masse d'agent compatibilisant du type Licocene PE MA 4351, qui est du PE auquel un anhydride maléique a été greffé. Les composites constitués de moins de 40% en masse de fibres ont été injectés à une température de 180°C et une pression de 50 bars. Alors que pour les composites contenant 40 % en masse de fibres, l'injection s'est faite à une température de 190°C et une pression de 55 bars. Les analyses aux temps initiaux ont été réalisées sur des échantillons non conditionnés au préalable. Les fibres n'ont subi aucun traitement à part la découpe. Les vieillissements ont été menés sur des plaques (60 x 60 x 2mm) et sur des éprouvettes haltères de type 1BA.

2.2. VIEILLISSEMENT DES MATERIAUX

Pour chacun des composite étudiés, une plaque et trois éprouvettes ont été placées dans un dessiccateur rempli à moitié d'eau distillée portée à 30°C, l'humidité mesurée au biais d'un bouton hygrothermique est de 100 %. Ces conditions ont été fixées car elles sont proches des conditions

d'applications envisagées et parce que ces composites peuvent être sujets à l'action des microorganismes et de ce fait à des phénomènes de biodégradations.

Avant vieillissement, tous les échantillons ont été séchés à 30°C pendant un mois jusqu'à masse constante, le but étant d'éliminer l'humidité initiale du fait de la présence des fibres au sein des composites. Le vieillissement proprement dit consiste en un cycle absorption à 100% HR et 30°C, pendant 120 jours suivi par un cycle de séchage à 30°C, pendant 100 jours et un deuxième cycle d'absorption dans les mêmes conditions pendant 104 jours. L'objectif du vieillissement en cycles longs est de déterminer la masse à saturation et le coefficient de diffusion des composites afin de prédire la réversibilité des évolutions.

Au cours du vieillissement, la prise de masse M d'un échantillon à l'instant t (M_t), exprimée en pourcentage, a été déterminée par la relation suivante :

$$M_t(\%) = \frac{(m_t - m_0)}{m_0} \times 100 \quad (1)$$

Avec m_t : masse du composite au temps t , m_0 : masse initiale de l'échantillon sec.

2.3. ANALYSE MECANIQUE

Les essais de traction ont été réalisés sur des éprouvettes haltères type 1BA. Les essais sont réalisés avec une vitesse de 2 mm/min, les résultats correspondent à une moyenne de 3 à 4 essais par matériau. Le module, la résistance et d'allongement à la rupture ont été déterminés directement à partir des courbes contrainte-déformation. Pour les mesures de déformations, un extensomètre vidéo a été utilisé. Le module d'élasticité a été déterminé sur un intervalle de déformation de 0,1 à 0,3%. En ce qui est des analyses après vieillissement, nous nous sommes basés sur les courbes gravimétriques, et les prélèvements ont été faits au point d'inflexion de la courbe et à la fin du plateau de saturation pour chaque cycle.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

Les résultats obtenus dans le cadre de cette étude expérimentale se déclinent en deux parties : la première partie concerne l'étude cinétique des isothermes de sorption-désorption d'eau. Il s'en suit une deuxième partie qui évaluera l'influence de ces prises consécutives de masse sur les propriétés mécaniques en termes de module d'élasticité, de contrainte et d'allongement à la rupture.

3.1. ETUDE DE LA CINETIQUE DE VIEILLISSEMENT A 30°C ET 100% HR

La figure1 présente l'évolution de la prise de masse pour chaque cycle de vieillissement des composites contenant 0, 20 et 40% en masse de fibres de lin et 40% en masse avec un agent compatibilisant qui est l'anhydride maléique.

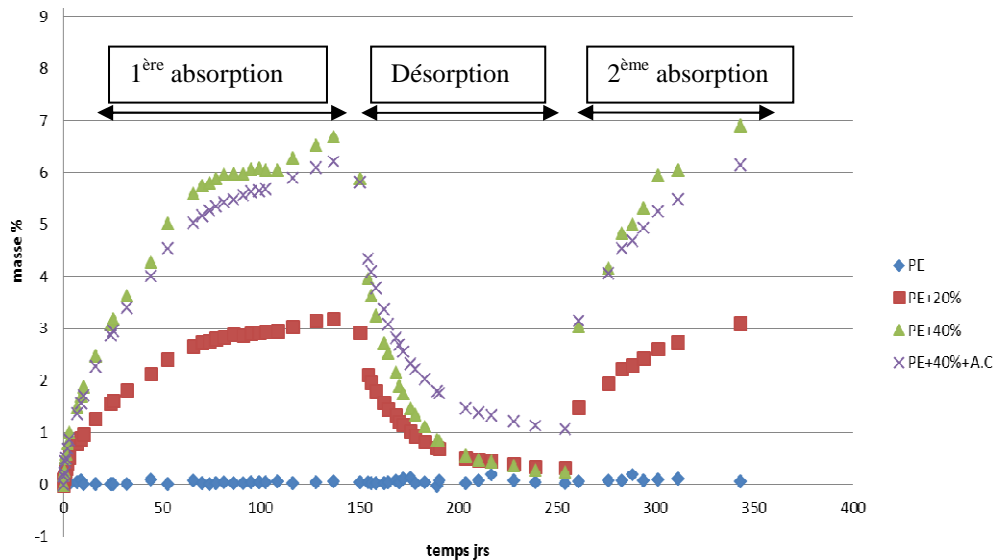


Figure 1 : Evolution de la prise de masse de composites PE avec différents taux massiques de fibres de lin (%), avec et sans agent compatibilisant (A.C) en fonction du temps de vieillissement.

A partir de la première absorption, il apparaît que les composites chargés présentent une prise de masse d'eau linéaire pour les temps courts de vieillissement, puis la diffusion ralentit jusqu'à atteindre un plateau, les composites sont alors saturés en eau. La cinétique de prise de masse des composites semble obéir à un modèle Fickien, où le processus de diffusion suppose l'établissement d'un palier de saturation sur les courbes de sorption (Boisseau, 2011 ; Arbelaiz et al., 2005 ; George et al., 1998 ; Joseph et al., 2002). En revanche, le PE seul ne présente pas de prise de masse, il apparaît donc qu'il n'y a pas d'absorption d'eau par ce polymère hydrophobe. De plus, les coefficients de diffusion (mm^2/s), ont été calculés pour chaque cycle en utilisant l'approximation suivante :

Pour $M_t/M_s < 0,5$:

$$\frac{M_t}{M_s} = \frac{4 \sqrt{Dt}}{h \sqrt{\pi}} \quad (2)$$

Avec : M_t la prise de masse à l'instant t en (%) ; M_s la prise de masse à saturation en (%) ; h l'épaisseur de la plaque soit 2 mm ; D : coefficient de diffusion ($\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) ; t : temps de vieillissement (s).

Si l'on considère α la pente de la droite d'équation :

$$\frac{M_t}{M_s} = \alpha(\sqrt{t}) \quad (3)$$

On peut en déduire que :

$$D = \frac{4 \alpha^2 \pi}{h^2} \quad (4)$$

L'absorption d'eau par nos différents matériaux est ainsi caractérisée par ces deux grandeurs dont les valeurs sont données dans le tableau 1.

Tableau 1 : Prise de masse à saturation M_s (%) et coefficient de diffusion D ($\text{mm}^2.\text{s}^{-1}$) des composites au cours des différents cycles de vieillissement à 30°C et 100% HR

	PE		PE+20%		PE+40%		PE+40%+A.C	
	M_s	D	M_s	D	M_s	D	M_s	D
Absorption	0	0	2,91	9,38E-08	6,05	8,55E-08	5,62	7,54E-08
Séchage	0,07	0	0,68	1,60E-07	0,84	2,22 E-07	1,77	1,37E-07
Réabsorption	0,06	0	3,1	1,19E-07	6,9	1,38E-07	6,14	1,01E-07

Ces analyses gravimétriques ont permis de montrer que la prise de masse des composites est principalement liée à la présence de fibres de lin (Joseph et al., 2002 ; Arbelaiz et al., 2005). En examinant l'effet du taux de fibres au cours de la première absorption, il apparaît que plus le taux de fibres augmente plus les masses à saturation sont importantes. Ceci est en accord avec d'autres études réalisées sur des composites à matrice polymère renforcée par différents taux de fibres cellulosiques (Roudier et al., 2012). Cette augmentation de la masse à saturation avec le taux de fibres est liée au caractère hydrophile des fibres et en particulier à la présence de cellulose et d'hémicellulose (Arbelaiz et al., 2011 ; Joseph et al., 2002 ; Chevali et al., 2010; Dhakal et al., 2007; Beg et Pickering, 2008). D'autres part, l'effet de la qualité de l'interface a été évalué en comparant le comportement du PE+40% lin avec et sans agent compatibilisant. Ce dernier semble limiter la diffusion de l'eau lors de la 1ère absorption du fait d'une meilleure adhésion entre fibres et matrice (George et al., 1998). En effet l'anhydride maléique réagit avec les groupement hydroxyles présents à la surface des fibres cellulosiques générant la formation de liaisons ester (Rana et al., 1998) permettant d'améliorer notablement la qualité de la zone interfaciale.

Pour ce qui est du cycle de désorption des composites, la diffusion est légèrement plus rapide que lors de la première absorption (Tableau 1). Comme on peut le voir sur la figure (1), l'évaporation des molécules d'eau est rapide pendant les 30 premiers jours de séchage puis les masses des échantillons se stabilisent ce qui marque la fin du processus de désorption. Cependant, les masses à saturation des composites PE+20% et PE+40%, semblent être légèrement plus élevées avec le taux de fibres présent dans le composite et se rapprocher de l'état initial sans pour autant l'atteindre. Une prolongation de la durée de séchage aurait peut-être permis de se ramener aux masses initiales. En se basant sur les travaux de Le Moigne et al. (2008), cette masse après désorption légèrement supérieure à la masse initiale pourrait être attribuée à la présence d'eau piégée provenant de la première absorption. En effet ces auteurs mentionnent qu'en plus de leur morphologie fibrillaire, les parois cellulaires des fibres naturelles possèdent une structure poreuse (pores, vides, capillaires et interstices) avec une distribution assez large de taille et de forme. Le séchage aurait pour effet une diminution irréversible de la taille des plus petits pores en raison des forces capillaires liées à la haute tension surfacique de l'eau. Les pores se rétréciraient selon un phénomène d'hornification. Ceci s'accompagne par une rigidification de la structure des polymères. Des liaisons hydrogène seraient formées entraînant ainsi une obstruction irréversible des pores renfermant de l'eau.

Par ailleurs, en comparant les composites renforcés avec 40% de fibres de lin avec et sans agent compatibilisant après désorption, il apparaît que l'anhydride maléique entraînerait une diminution du coefficient de diffusion et une augmentation de la masse à saturation. Ceci peut être lié respectivement à la qualité de l'interface qui est meilleure en présence d'un agent compatibilisant et à des réactions d'hydrolyse de l'anhydride maléique en présence d'eau (Abdel-Hakim et al., 2012 ; Belekian, 2012 ; Mehrabzadeh et al., 2009).

Comparé à la première absorption, les composites étudiés présentent des coefficients de diffusion et des masses à saturation plus élevés lors du deuxième cycle d'absorption (Tableau 1 et figure 2). Il apparaît donc qu'une dégradation se serait produite lors de ce vieillissement. Une fraction des fibres aurait été extraite, ce qui a été confirmé par analyse chimique des solutions de vieillissement. Les molécules d'eau accèderaient ainsi plus facilement au sein du composite et s'inséreraient dans les pores et les vides. De même, l'augmentation du coefficient de diffusion du composite avec anhydride maléique après la 2^{ème} absorption peut être due à une réaction de l'anhydride avec les molécules d'eau entraînant ainsi la dégradation de l'interface.

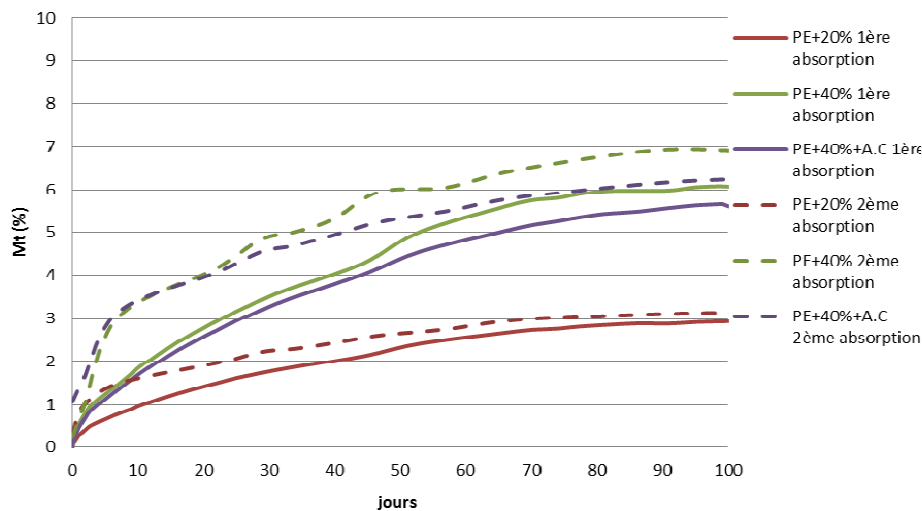


Figure 2 : Superposition des deux absorptions d'eau à 30°C et 100%HR

Dans la suite de cet article, nous allons évaluer l'effet ces différentes évolutions liées au vieillissement de ces composites sur leur caractéristiques mécaniques.

3.2. EFFET DU VIEILLISSEMENT SUR LES PROPRIETES MECANQUES DES MATERIAUX

L'identification de l'effet des taux de fibres sur les propriétés mécaniques des composites est primordial afin de mieux comprendre ensuite les évolutions des propriétés au cours des cycles de vieillissement. Dans la suite, nous expliquerons le rôle des fibres dans l'évolution de chacune des propriétés, puis nous nous intéresserons aux évolutions de ces propriétés au cours de la première adsorption et du séchage.

D'abord, comme le montre la figure 3, la superposition des courbes contrainte déformation lors des essais de traction uniaxial sur éprouvettes haltères met en évidence des différences de comportement mécanique importantes en fonction du taux de fibres.

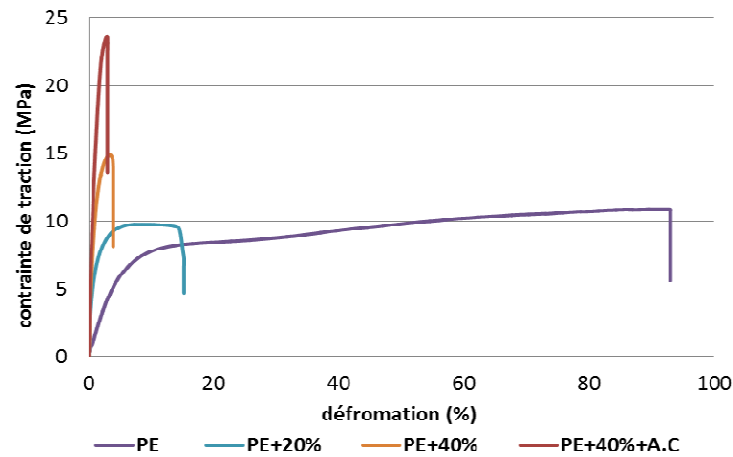


Figure 3 : Effet du taux de fibres sur les propriétés mécaniques des composites non vieillis

De plus, nous constatons que l'ajout de fibres de lin entraîne une diminution de de l'allongement à la rupture d'autant plus importante que le taux de fibres est élevé. Pour l'ensemble des composites testés, le module d'Young augmente avec le taux massique de fibres, et pour un taux de fibres équivalent, la présence d'un agent de couplage permet d'avoir une augmentation d'environ 20%.

3.2.1. EVOLUTION DU MODULE

Initialement, une augmentation du module d'élasticité des composites avec le taux de fibres a pu être observée. Ceci prouve que les fibres jouent un rôle de renforcement des composites, grâce à leur module plus élevé que celui de la matrice et pouvant aller de 12 et 85 GPa. Ce rôle des fibres naturelles est évoqué par différents auteurs qui ont relaté une augmentation du module de composite avec le taux de fibres (Bos et al., (2006); Abdelmouleh et al., (2007) et Essabir et al. (2013)). Dans la littérature, on attribue le module élevé des fibres aux microfibrilles de cellulose. Après fractionnement des fibres de lin selon un protocole bien défini, nous avons déterminé une importante fraction de cellulose équivalente à 86% de matière sèche. Une revue de la littérature montre que l'augmentation du module des composites s'explique aussi par d'autres paramètres soit liés aux fibres comme le ratio d'aspect longueur/diamètre des fibres (Bouzouita, 2011), soit aussi à l'orientation des fibres au sein du composite (Gassan et Bledzki, 1999) etc....

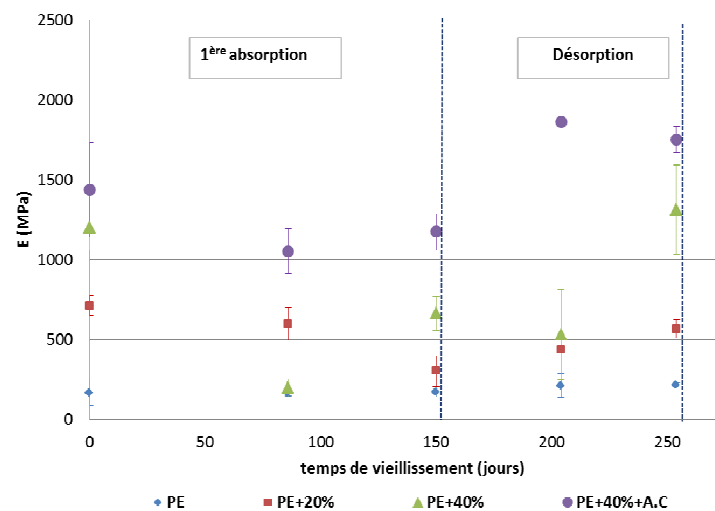


Figure 4 : Evolution du module de traction en fonction du temps de vieillissement des composites

Après vieillissement, le module du PE seul semble ne pas être influencé par le vieillissement. Ce résultat semble cohérent avec les résultats de sorption-désorption qui ne révèlent pas de changement au niveau de la prise de masse de la matrice. Pour ce qui est des composites, nous observons une diminution de module après absorption, cette chute est d'autant plus importante que le taux de fibres est élevé. Ceci peut être expliqué par l'absorption d'eau par les fibres. En effet, l'influence de l'humidité sur les propriétés mécaniques de la fibre de lin a été étudiée par Roudier (2012). L'auteur a constaté une diminution du module d'élasticité longitudinal de 32,6 GPa à 27,7 GPa en augmentant l'humidité relative du milieu de 33% à 60%. Ceci pourrait être dû à des phénomènes de plastification (Le Duigou et al., 2009).

L'ensemble de ces évolutions semblent être réversibles après séchage. En effet, l'élimination des molécules d'eau met en place un procédé d'hornification des fibres décrit dans la partie 1 de cet article. Il en résulterait une rigidification des fibres (Le Moigne, 2008). La qualité de l'interface est également améliorée. Ceci peut-être lié après séchage à une estérification de l'acide maléique issue de l'hydrolyse de l'anhydride par les fonctions hydroxyles présentes à la surface des fibres.

3.2.2. EVOLUTION DE LA RESISTANCE A LA RUPTURE

Pour les composites initiaux, la figure 5 montre qu'il existe peu d'effet des fibres sur la contrainte à la rupture pour un taux massique de 20%, mais à un taux plus élevé en fibres soit 40%, une évolution de la contrainte est observée. Park et al., (1997) définissent une fraction volumique des fibres de bois égale à 0,14 à partir de laquelle une augmentation de la résistance à la traction des composites fibres de bois/PP est observée. Selon Al Maadeed et al. (2014), les fibres auraient une double influence sur la résistance à la traction :

- D'abord, un effet de renforcement à des taux de fibres élevés : l'augmentation de la capacité à reprendre les charges entrainerait une augmentation de la résistance.
- A des faibles taux de fibres, la résistance du composite peut être équivalente à celle du polymère seul. En effet, la réorientation des chaînes dans la phase amorphe des polymères semi-cristallins, s'accompagnerait par une augmentation de la résistance à la rupture. Ce phénomène semble être limité par la présence des fibres, considérées comme des défauts noyés dans la matrice (Al Maadeed et al., 2014).

Après vieillissement, nous ne constatons pas d'effet sur la contrainte à la rupture du matériau. Le vieillissement dans ces conditions ne semble pas avoir entraîné de dégradation de l'intégrité mécanique des composites.

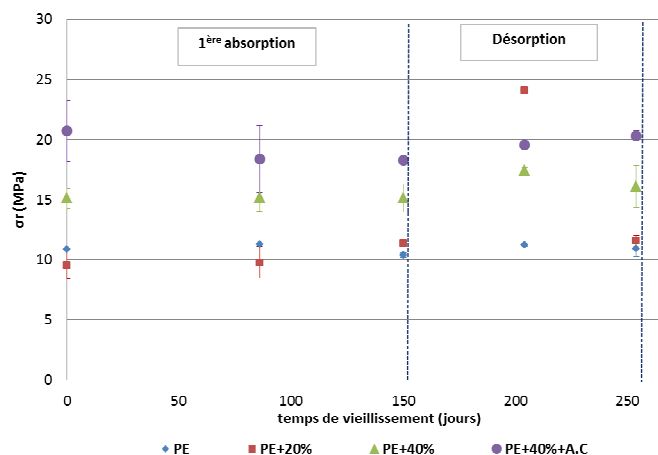


Figure 5 : Evolution de la contrainte à la rupture en fonction du temps de vieillissement des composites

4. CONCLUSION

Dans cette étude, nous avons suivi par gravimétrie les prises de masse au cours de cycles longs de sorption-désorption-réabsorption. L'accent a été porté sur l'effet de la concentration des fibres ainsi que sur la qualité de l'interface par analyse de composite avec un anhydride maléique. Les évolutions après séchage ont permis de nous renseigner sur la réversibilité des évolutions liées à l'eau. Ainsi, les paramètres cinétiques obtenus ont mis en évidence des évolutions irréversibles qui se traduisent par une augmentation du coefficient de diffusion lors de la deuxième absorption ainsi que par une masse après désorption supérieure à la masse initiale des composites, et ce quel que soit le taux de fibres. Ces évolutions ne sont pas sans conséquences sur les propriétés mécaniques de nos matériaux. Dans un premier temps, nous avons essayé de mieux comprendre l'effet de l'addition des fibres sur ces propriétés. Il apparaît que la présence de fibres de lin permet d'obtenir de meilleures propriétés mécaniques initiales notamment pour le module élastique. Aussi, nous avons mis en évidence des évolutions réversibles de module de composite après séchage. Cependant, le vieillissement dans ces conditions hygrothermiques ne semble pas avoir d'effet sur la contrainte. Ces constatations méritent d'être complétées spécifiquement par des analyses morphologiques au microscope électronique à balayage. Ces observations devraient permettre entre autres de nous renseigner sur l'évolution de la qualité à l'interface au cours du vieillissement qui n'est pas sans conséquences sur les propriétés mécaniques des composites.

5. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. A. Arbelaz et al., *Mechanical properties of short flax-fibre bundle/polypropylene composites: influence of matrix/fibre modification, fibre content, water uptake and recycling*, Composite Science and Technology (65) (2005) 82–92
2. H. Dhakal et al., *Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites*. Composites Science and Technology (67) (2007) 1674-1683
3. M.D.H. Beg, *Reprocessing of wood fibre reinforced polypropylene composites. Part II: Hygrothermal ageing and its effects*. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing (39) (2008) 1565- 1571
4. A.C. Karmaker et al.,(1996) *Effect of water absorption on dimensional stability and impact energy of jute fibre reinforced polypropylene*. Journal of Materials Science Letters (16) (1997) 462-464
5. M. C. Matias et al., *Comparative spectroscopic study of the modification of cellulosic materials with different coupling agents*, Journal of Applied Polymer Science, (75) (2003) 256- 266
6. J. M. Felix et al., *Nature of adhesion in composites of modified cellulose fibers and polypropylene*, Journal of Applied Polymer Science, (42) (1991) 608-609
7. K. Van De Velde et al., *Thermal and mechanical properties of flax fibres as potential composite reinforcement*. Macromolecular Material Engineering (286) (2001) 342–349
8. P. V. Joseph et al., *Environmental effects on the degradation behavior of sisal fibre reinforced polypropylene composites*. Composites Science and Technology (62) (2002) 1357–1372
9. V. S. Chevali et al., *Effect of environmental weathering on flexural creep behavior of long fibre-reinforced thermoplastic composites*, Polymer Degradation and Stability (95) (2010) 2628-2640
10. J. George et al., *Effects of environment on the properties of low density polyethylene composites reinforced with pineapple-leaf fibre*, Composites Science and Technology (58) (1998) 1471–1485
11. A. Le Duigou et al., *Sea water ageing of flax /poly (lactic acid) biocomposite*, Polymer Degradation and Stability (94) (2009) 1151-1162
12. M. Al Maadeed et al., *Mechanical, sorption and adhesive properties of composites based on low density polyethylene filled with date palm wood powder*, Materials and Design (53) (2014) 29–37
13. F. Z. Arrakhiz et al. *Mechanical and thermal properties of natural fibers reinforced polymer composites: Doum/low density polyethylene*, Materials and Design (43) (2013) 200–205
14. A. Boisseau, Thèse de l'Université Franche Comté. *Etude de la tenue à long terme de matériaux composites immergés pour structures de récupération d'énergies marines* (2011)

15. A. Roudier, Thèse de l'Université Blaise Pascal-Clermont II. *Analyse multi-échelle du comportement hygro-mécanique des fibres de lin*, (2012)
16. A.K. Rana et al., *Short Jute Fiber-Reinforced Polypropylene Composites: Effect of Compatibilizer*. Journal of Applied Polymer Science (69) (1998) 329 – 338
17. A. Abdel-Hakim et al., *Mechanical properties and morphology Studies of Nanocomposites Based on RSF/Nanoclay modified /HDPE Nanocomposites*. Life Science Journal (9) (2012) 134-142
18. M. N. Le Moigne, Thèse de l'école nationale supérieure des mines de Paris. *Mécanismes de gonflement et de dissolution des fibres de cellulose* (2008)
19. H. L. Bos et al., *Mechanical properties of short-flax-fibre reinforced compounds*. Composites: Part A (37) (2006) 1591–1604
20. M. Abdelmouleh et al., *Short natural-fibre reinforced polyethylene and natural rubber composites: Effect of silane coupling agents and fibres loading Composites*, Science and Technology (67) (2007) 1627–1639
21. H. Essabir et al., *Dynamic mechanical thermal behavior analysis (DMTA) of doum fibers reinforced polypropylene composites*; Materials and Design (51) (2013) 780-788
22. S. Bouzouita, Thèse de l'Ecole Centrale de Lyon. *Optimisation des interfaces fibre/matrice de composites à renfort naturel*. (2011)
23. A. K. Bledzki et al., *Composites reinforced with cellulose based fibres*. Progress in Polymer Science (24) (1999) 221–274
24. B. D. Park et al., *Mechanical properties of wood-fiber/toughened isotactic polypropylene composites*, Polymer composites (18) (1997) 79–89