

# Biocomposites: définition, applications et verrous scientifiques à lever

Amandine Céline, Pascal Casari, Ziad El Hachem, Sylvain Fréour, Olivier  
Gonçalves, Antoine Le Duigou, Frédéric Jacquemin, Mael Peron

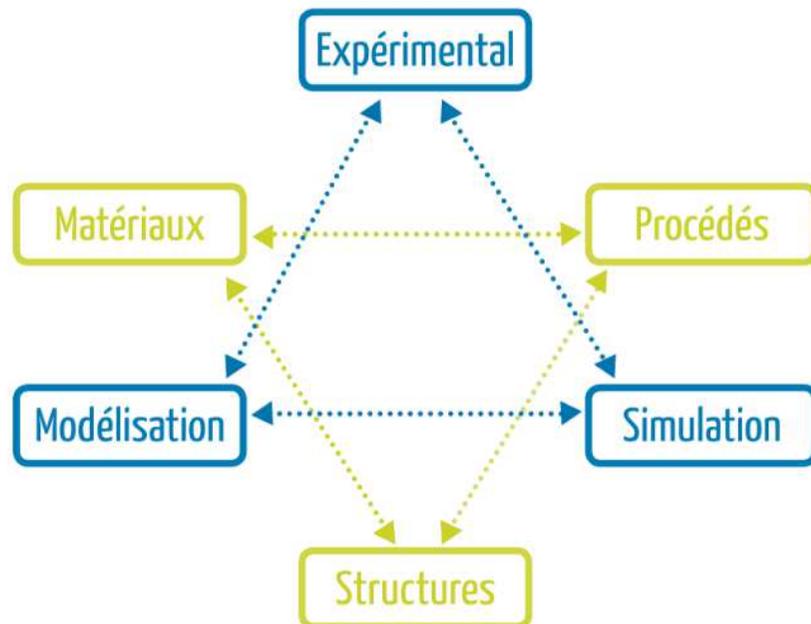
**Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique**  
UMR 6183 CNRS – Ecole Centrale de Nantes – Université de Nantes

# Le GeM



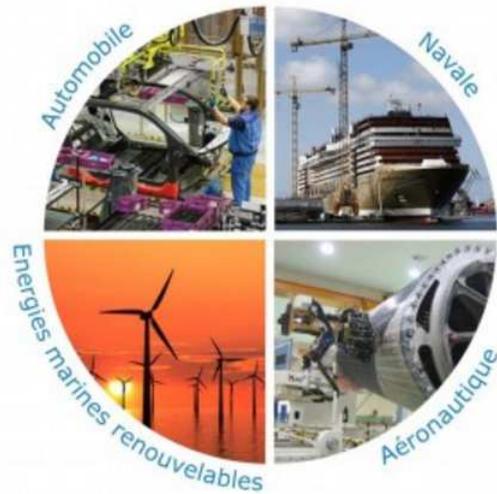
## Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique

UMR CNRS 6183



- **230** personnes
- **75** enseignants chercheurs
- **6** équipes de recherche
- **3** tutelles
- **545** publications (2010-2015)
- **100** thèses soutenues (2010-2015)

# Le GeM



## 6 équipes de recherche

- Interactions Eau-Géomatériaux
- Matériaux-Ouvrages-Environnement
- Calcul des Structures
- Structures & Simulations
- État Mécanique et Microstructure des Matériaux
- Matériaux, Procédés et Technologies Composites

## 3 axes

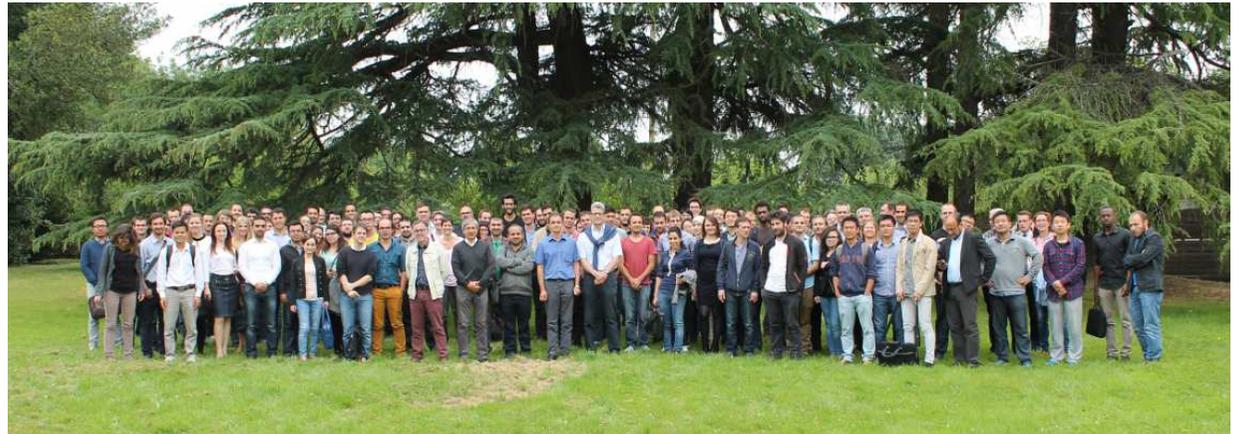
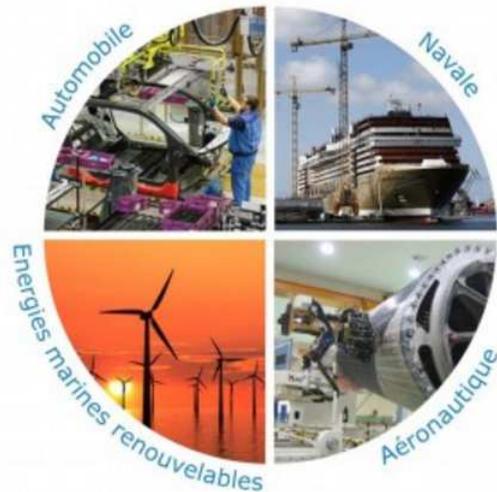
Génie Civil

Matériaux & Procédés

Mécanique des structures

**Plateformes technologiques :**  
hébergement au sein des équipes, avec accès mutualisé

# Le GeM



## 6 équipes de recherche

- Interactions Eau-Géomatériaux
- Matériaux-Ouvrages-Environnement
- Calcul des Structures
- Structures & Simulations
- **État Mécanique et Microstructure des Matériaux**
- Matériaux, Procédés et Technologies Composites

## 3 axes

Génie Civil

Matériaux & Procédés

Mécanique des structures

**Plateformes technologiques :**  
hébergement au sein des équipes, avec accès mutualisé

# L'équipe E3M

Etat Mécanique et Microstructure des Matériaux



- **30** personnes
- **16** enseignants chercheurs



# L'équipe E3M

Développement et utilisation de modèles et d'approches expérimentales **multiéchelles** dans un contexte **multiphysique**

Durabilité des matériaux composites

Comportement thermomécanique des matériaux métalliques



# Plan

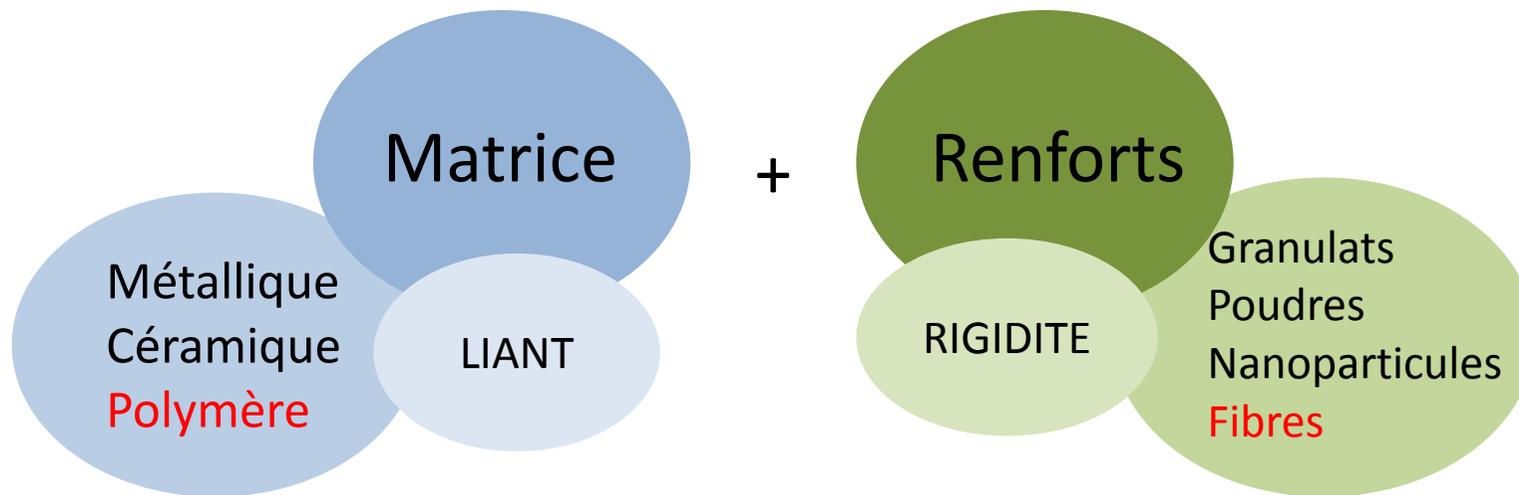
- Contexte
- Verrous scientifiques
- Démarche scientifique
- Principaux résultats
- Conclusion et perspectives: besoins en  
CND

# Contexte: les matériaux composites

## Définition

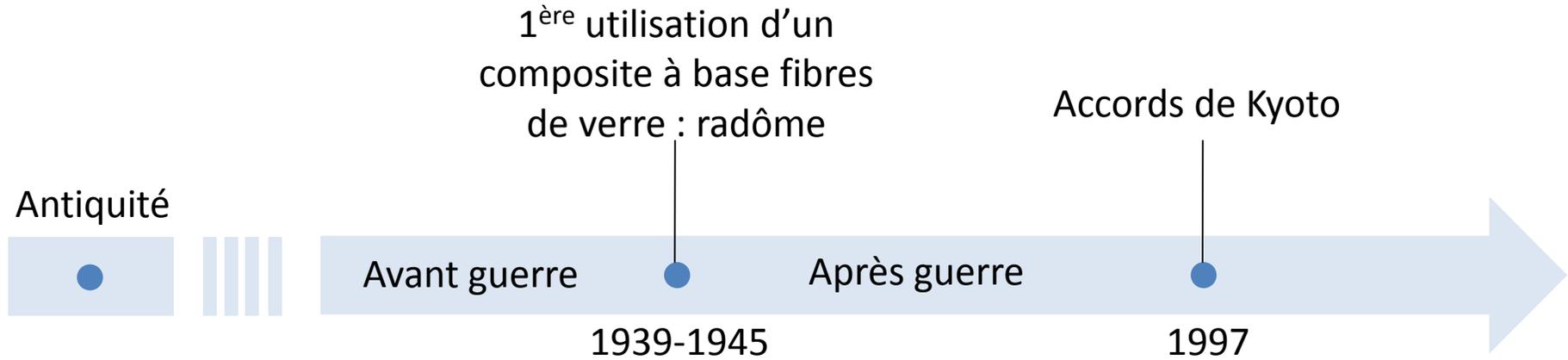
« Addition de plusieurs matériaux dans le but d'obtenir des propriétés supérieures à ce que l'on obtiendrait avec un seul matériau »

Composite = **Matériau hétérogène**



AXE DURABILITE DES MATERIAUX COMPOSITES  
→ Composites à matrice polymère et renforts fibreux

# Contexte: un peu d'histoire

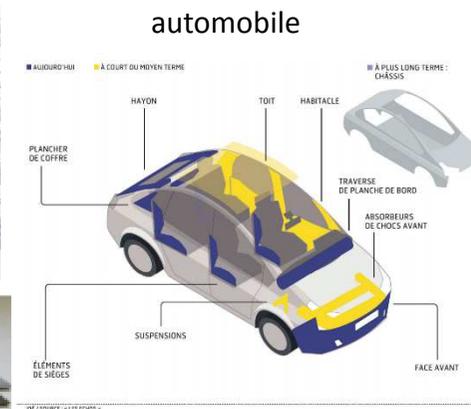
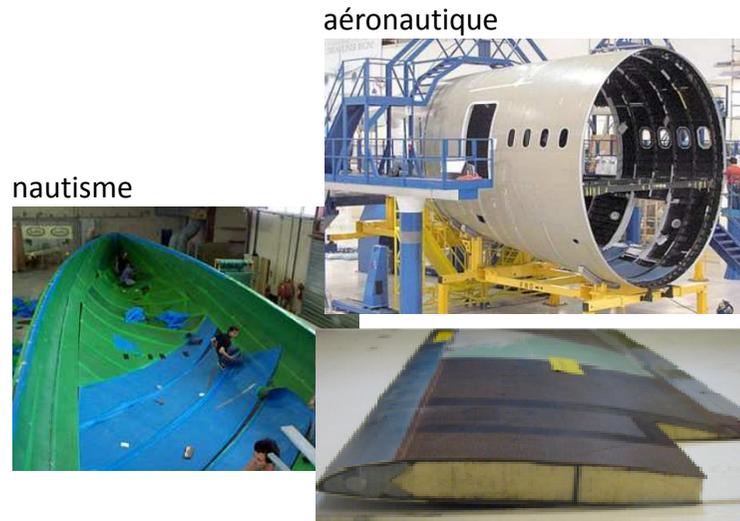


Premiers matériaux composites

Torchis: terre + paille

Développement de l'industrie plasturgique

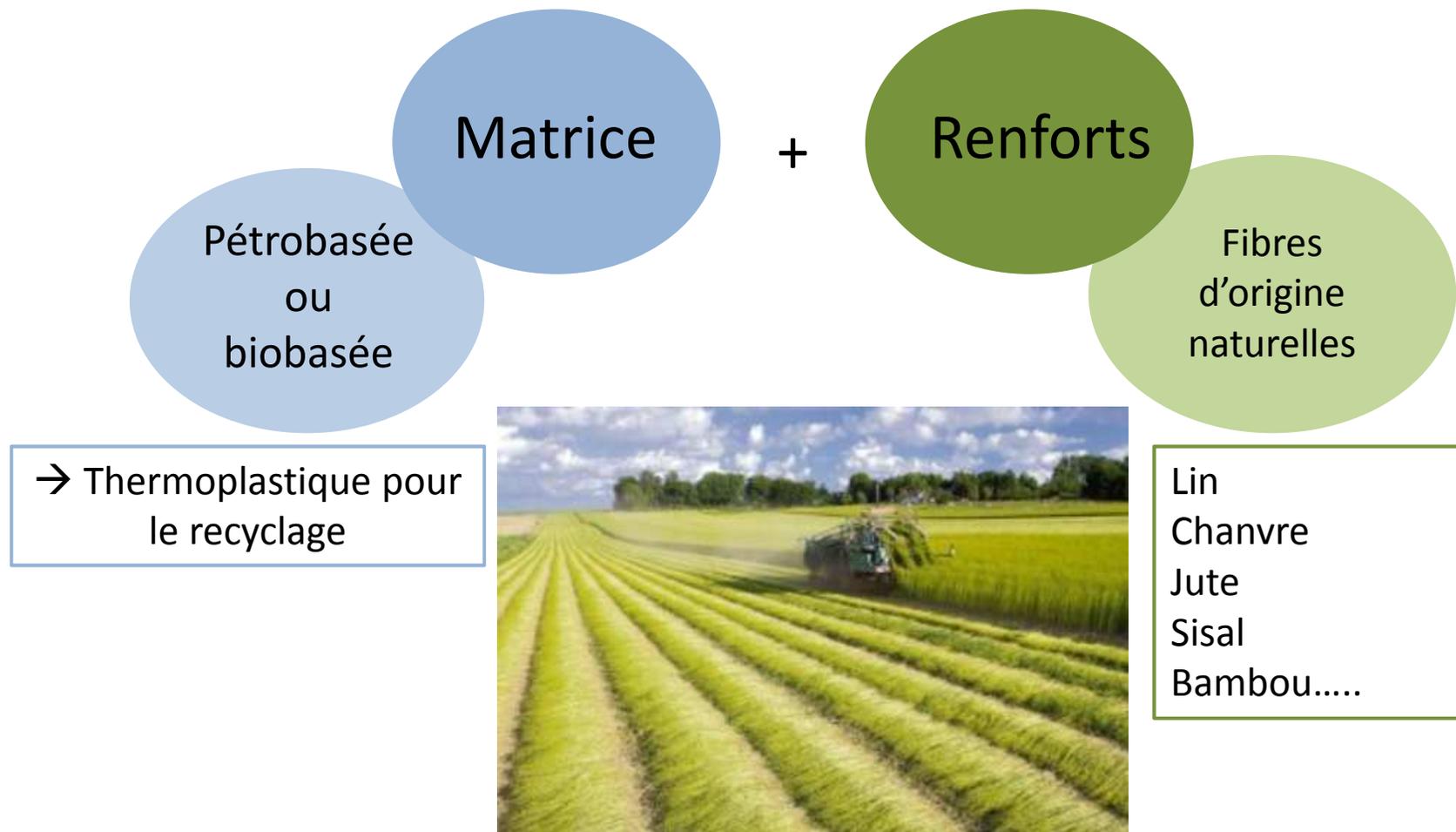
Industrialisation des composites à matrice organique



# Contexte: les matériaux bio-composites

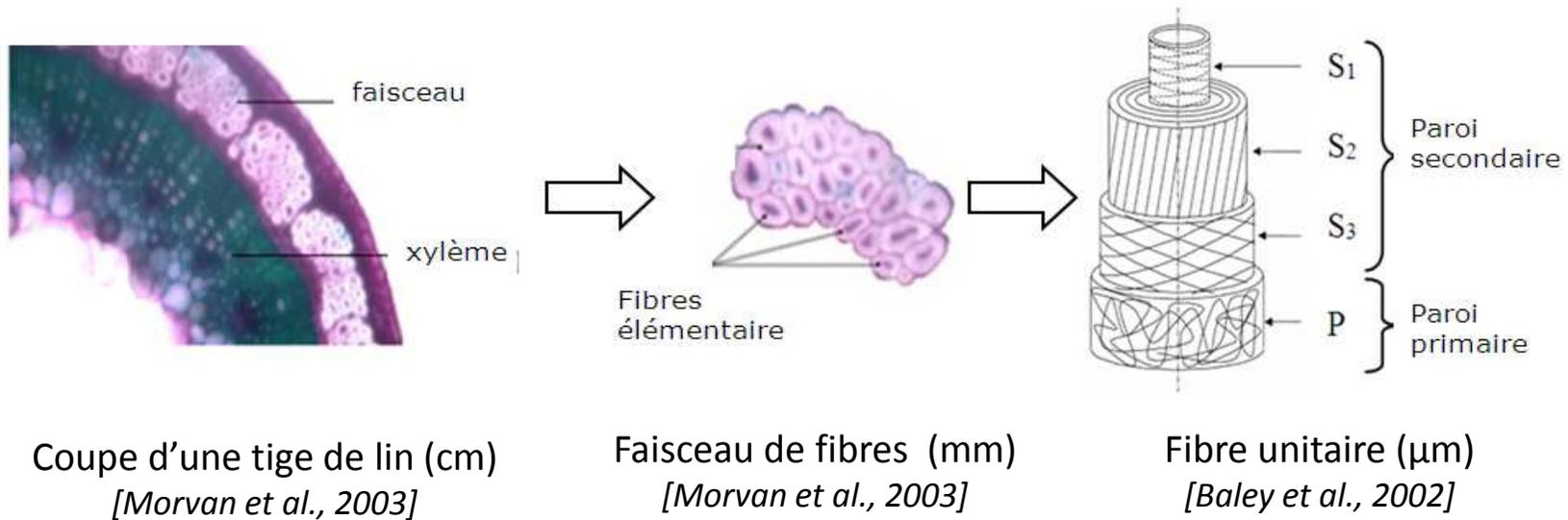
## Définition

Biocomposite = **Matériau (encore plus) hétérogène**



Production du lin

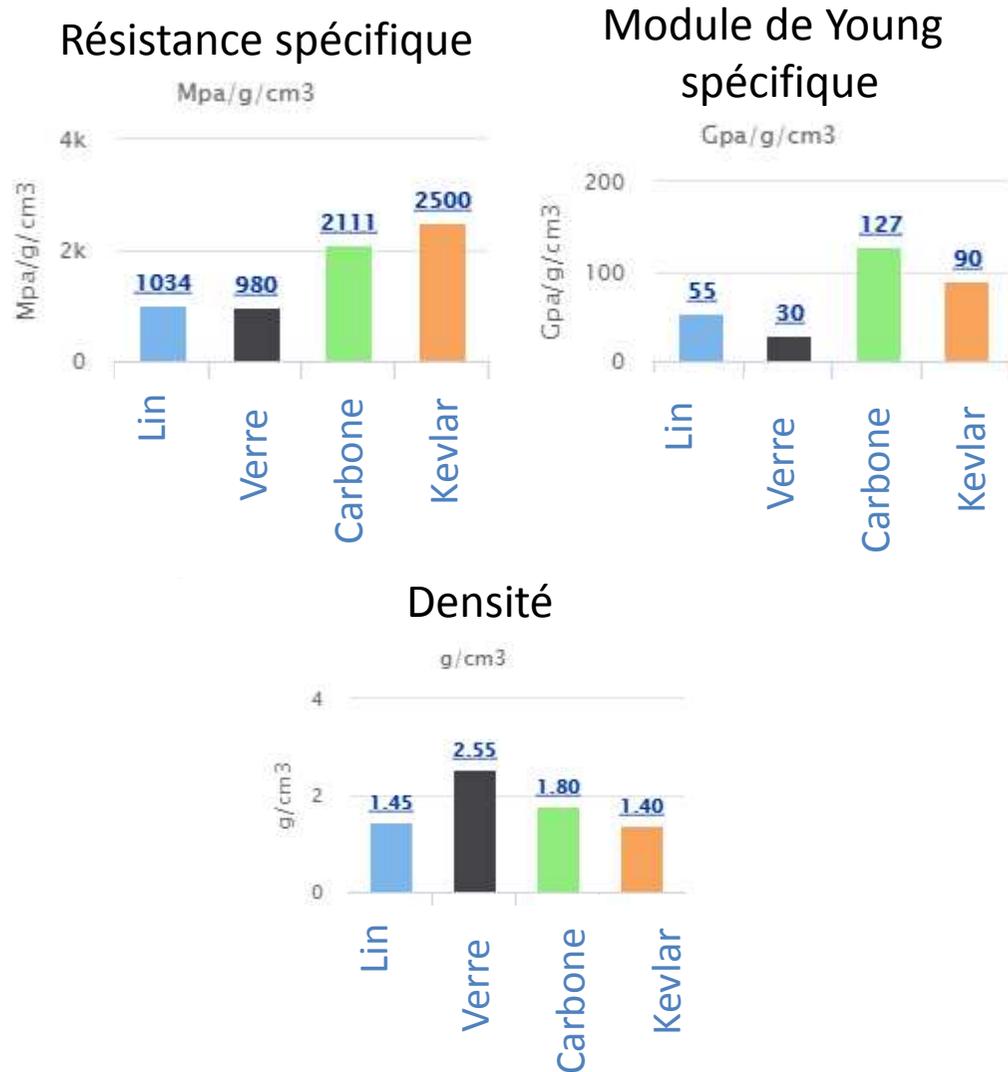
# Contexte: Structure multi-échelle des fibres de lin



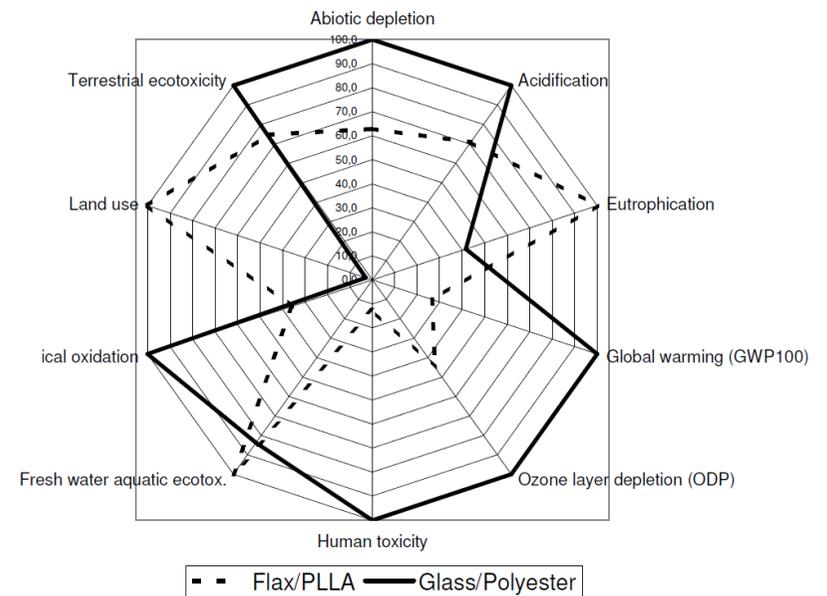
**Hétérogénéité** interne des fibres végétales = matériau composite

# Contexte: Intérêt des fibres naturelles

Propriétés mécaniques spécifiques équivalentes à celles des fibres de verre [1]



Réduction de l'impact environnemental [2]

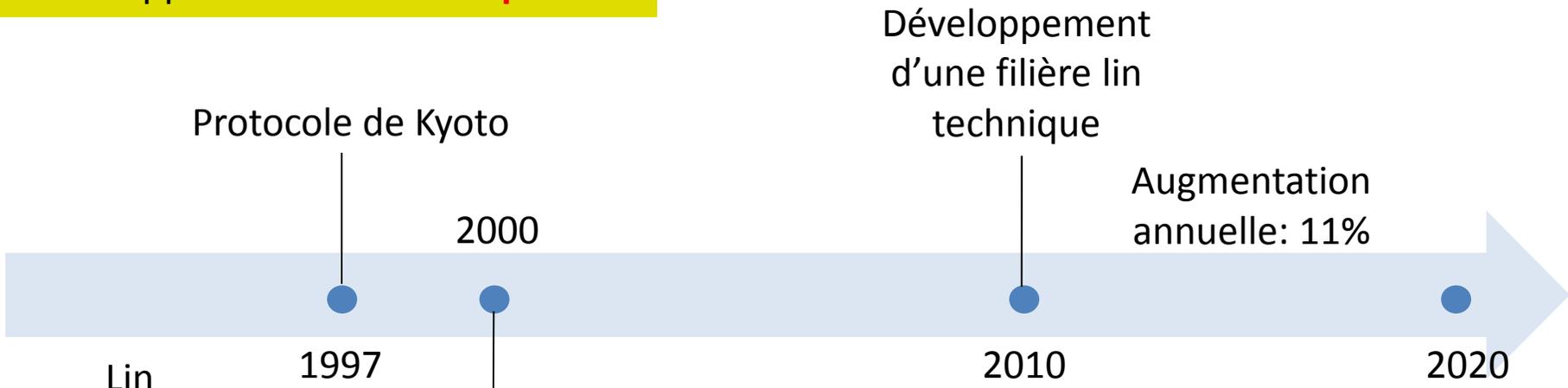


[1] [www.lineo.eu](http://www.lineo.eu)

[2] Le Duigou et al., 2011

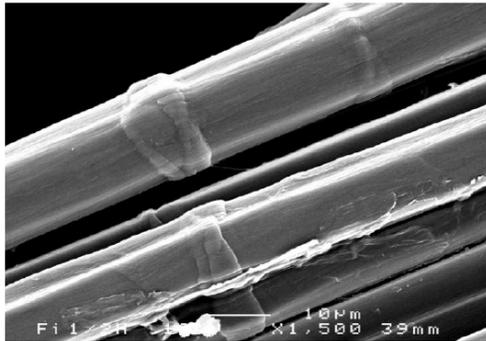
# Contexte: Un marché en plein essor

Développement des **biocomposites**



# Verrous scientifiques

## Variabilité des propriétés



Défauts intrinsèques [Baley, 2002]

	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	$\sigma$ (MPa.cm <sup>3</sup> /g)	E (GPa.cm <sup>3</sup> /g)
Lin	1,4-1,55	238-1000	34-76

Variabilité des propriétés [Baley, 2002]

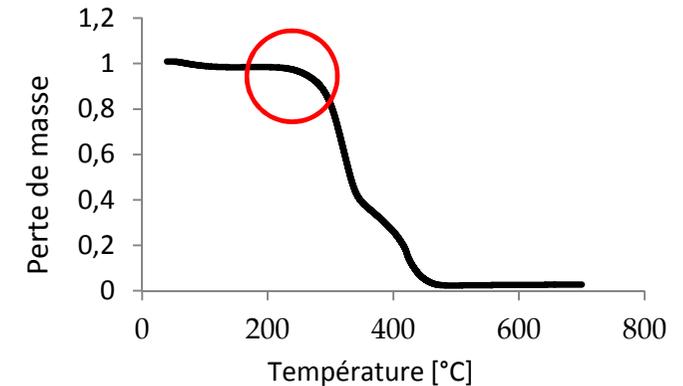
Facteurs influençant la variabilité:

- Climat
- Défauts
- Procédés d'extraction

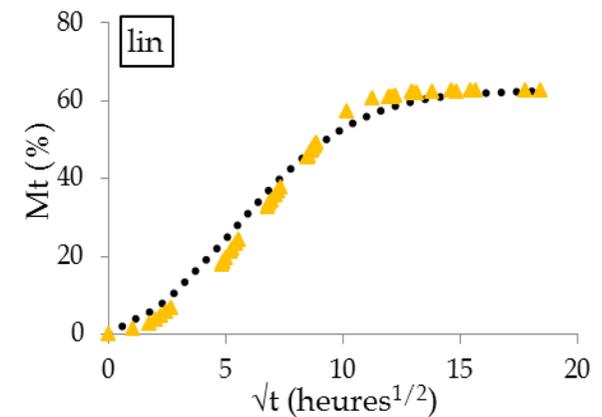
## Adhésion fibres/matrice

Amélioration de l'interface par l'utilisation de traitements spécifiques

## Sensibilité à l'environnement



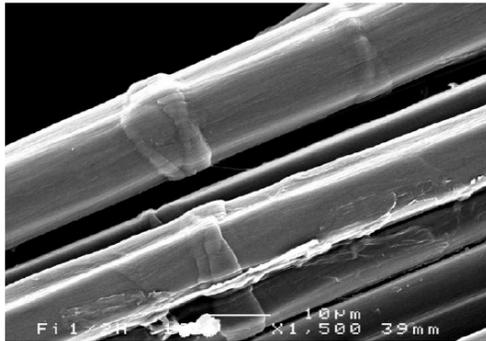
## Dégradation des fibres à 200°C



Forte absorption d'humidité <sup>14</sup>

# Verrous scientifiques

## Variabilité des propriétés



Défaut intrinsèques [Baley, 2002]

	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	$\sigma$ (MPa.cm <sup>3</sup> /g)	E (GPa.cm <sup>3</sup> /g)
Lin	1,4-1,55	238-1000	34-76

Variabilité des propriétés [Baley, 2002]

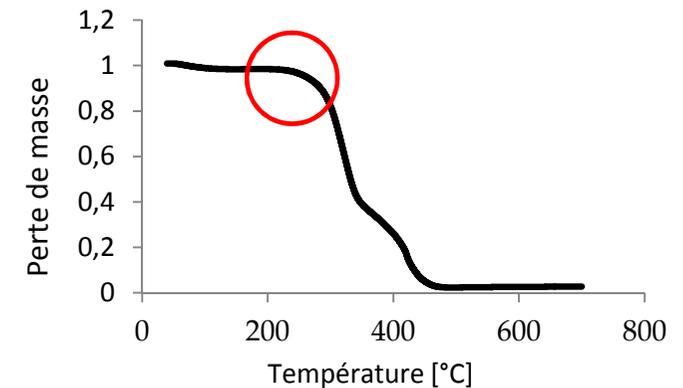
Facteurs influençant la variabilité:

- Climat
- Défauts
- Procédés d'extraction

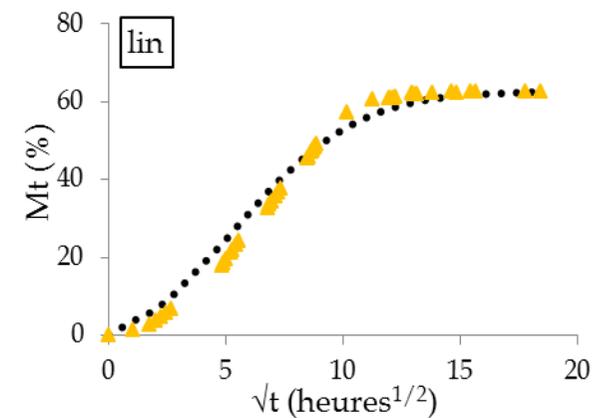
## Adhésion fibres/matrice

Amélioration de l'interface par l'utilisation de traitements spécifiques

## Sensibilité à l'environnement



## Dégradation des fibres à 200°C



Forte absorption d'humidité <sup>15</sup>

# Verrous scientifiques

## Sensibilité à l'environnement

- Matériaux soumis à des conditions environnementales variables durant leur cycle de vie



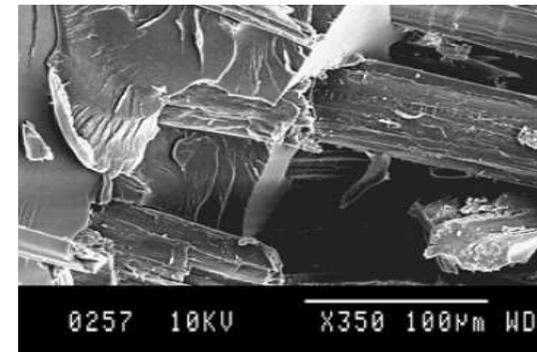
### Sensibilité à l'humidité

- Reprise en eau
- Dégradation des propriétés
- Gonflement

### Conséquences

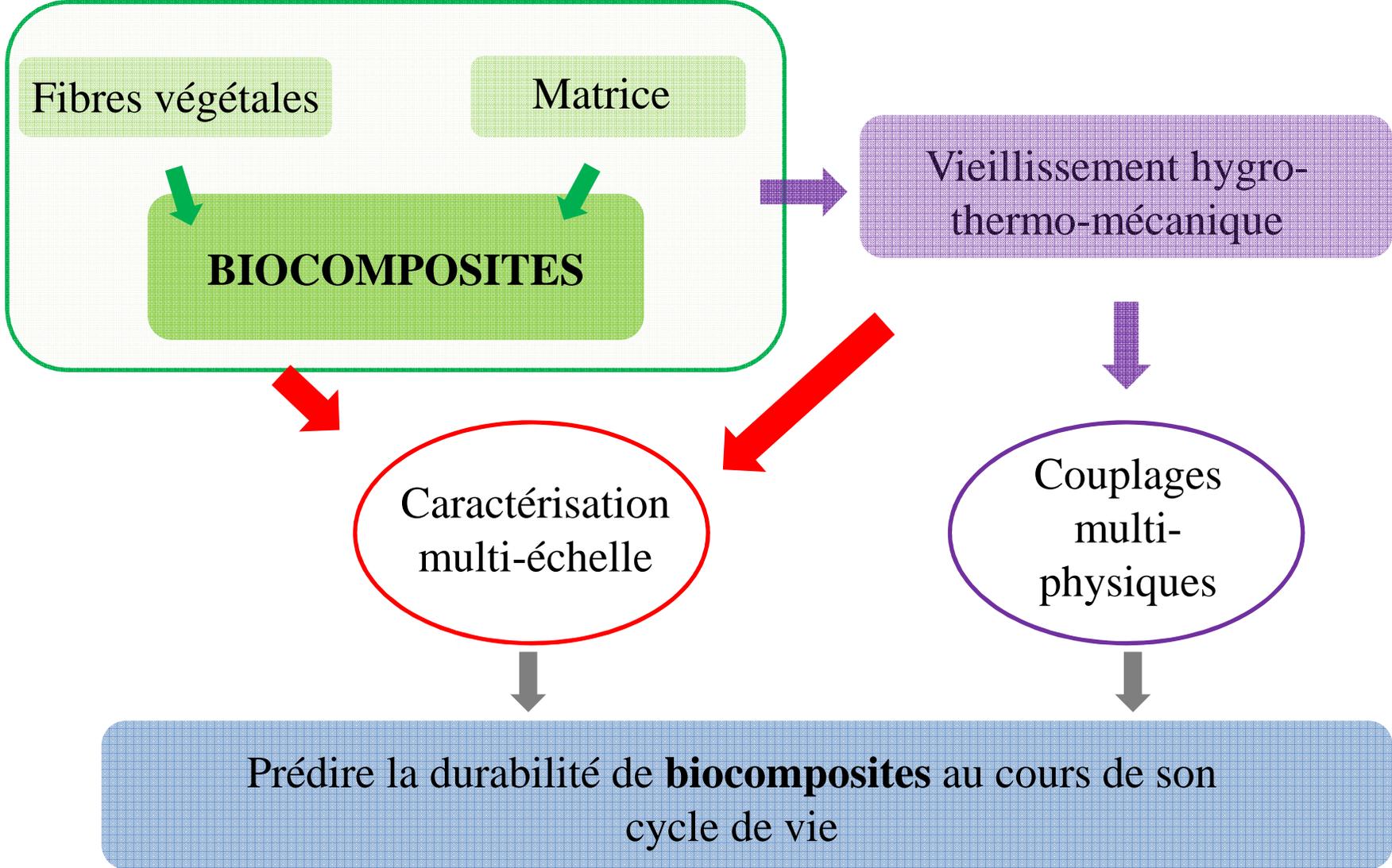
- Gonflement différentiel?
- Endommagement?

Durée de vie?  
Applications structurales?



Dhakal et al., 2007

# Démarche scientifique

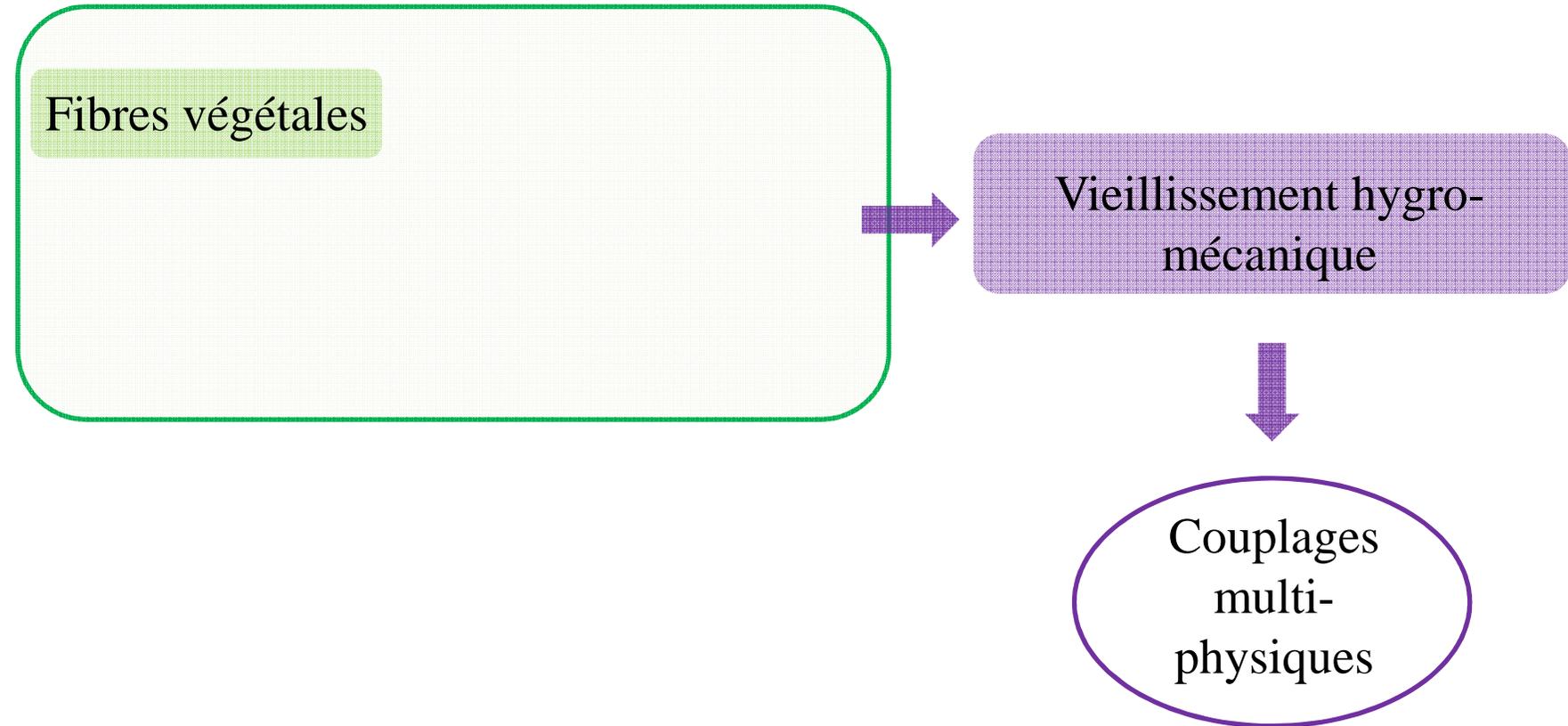


# Projets

2010-2013	Thèse A. Célineo	fibres	F. Jacquemin, P. Casari, S. Fréour, O. Gonçalves
2015	Stage DUT	fibres	R. Shao
2016-...	Thèse Ziad El Hachem	Multi-échelle	S. Fréour, G. Chalita
2017	Stage DUT	composites	M. Hédouin
2017	Collaboration IRDL	composites	M. Peron, A. Le Duigou
2018-...	Thèse GeM/IRDLD/Multiplast	Multi-échelle	A. Le Duigou, M. Peron, M. Castro



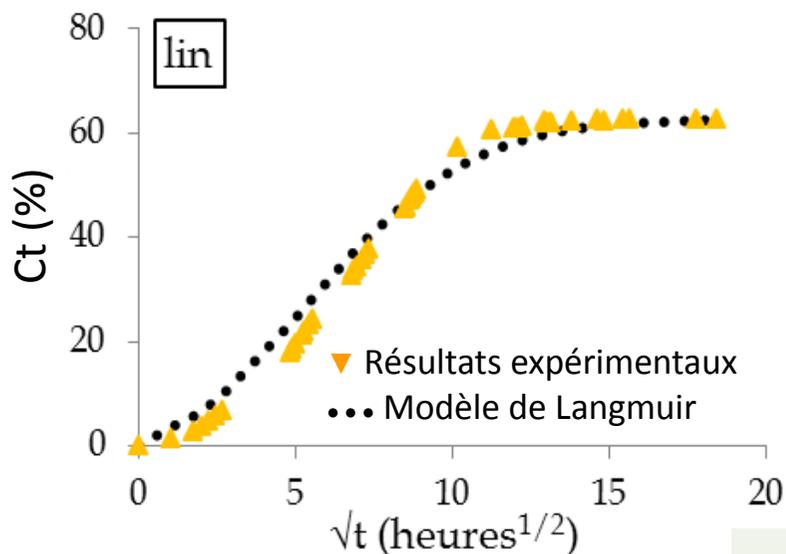
# Principaux résultats : fibres végétales



# Principaux résultats : fibres végétales

## Caractérisation du comportement diffusif de différentes fibres végétales

- Détermination de leurs paramètres de diffusion → **modèles découplés**
- En humidité relative → comportement Fickien
- En immersion → Ecart à la loi de Fick (modèle de Langmuir)



$$C_t (\%) = \frac{m(t) - m_0}{m_0} \times 100$$

$$\begin{cases} \frac{\partial n}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 n}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial n}{\partial r} \right) + \frac{\partial N}{\partial t} \\ \frac{\partial N}{\partial t} = \gamma n - \beta N \end{cases}$$

Diffusion 1D, cylindre homogène  
[Carter et Kibler, 1978]

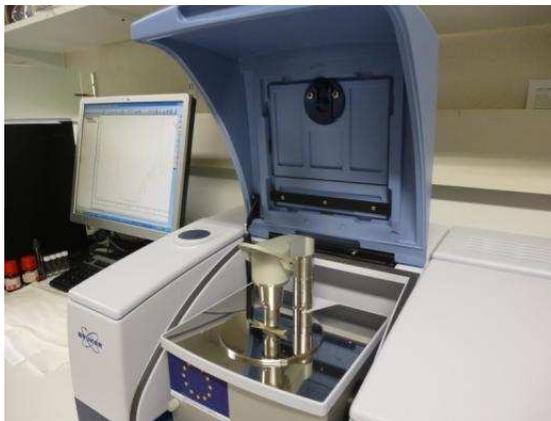
	chanvre	jute	lin	sisal
<b>D (mm<sup>2</sup>/s)</b>	5,6 10 <sup>-6</sup>	5,9 10 <sup>-6</sup>	6,8 10 <sup>-6</sup>	9,1 10 <sup>-6</sup>
<b>β (s<sup>-1</sup>)</b>	4,25 10 <sup>-6</sup>	4,95 10 <sup>-6</sup>	5,75 10 <sup>-6</sup>	8,25 10 <sup>-6</sup>
<b>M<sup>∞</sup> (%)</b>	63	67,8	62,5	60,6

Paramètres de diffusion pour chaque fibre  
[Célineo et al., J. Appl. Polym. Sci., 2013]

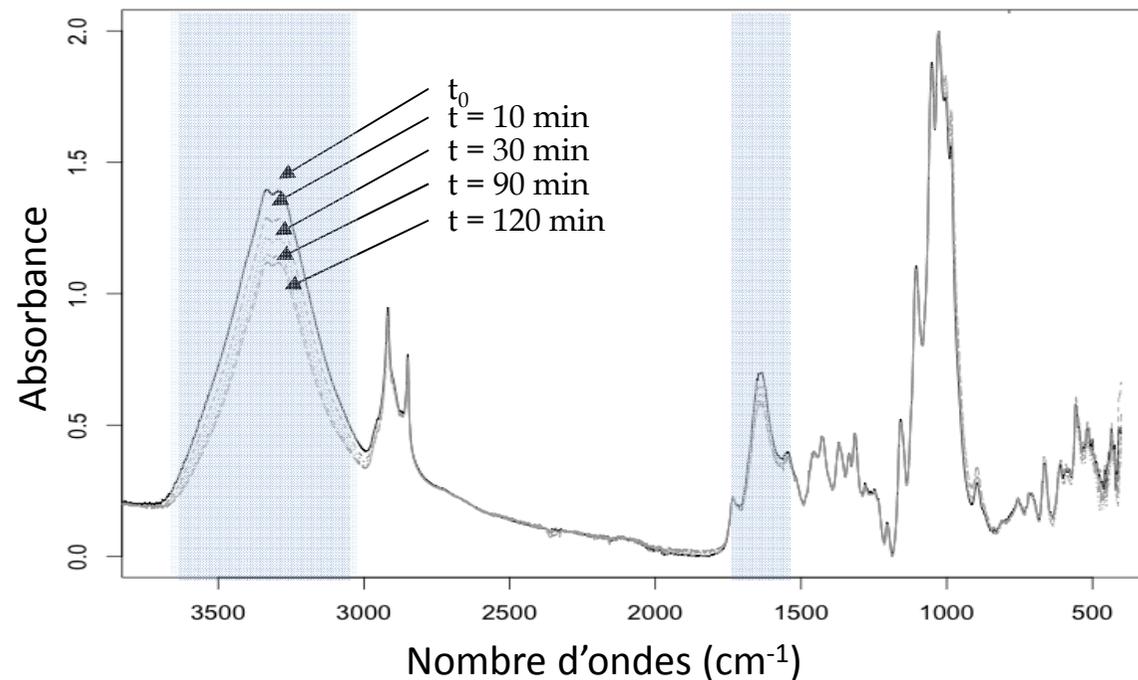
# Principaux résultats : fibres végétales

## Etude du phénomène de diffusion par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (*collaboration GEPEA UMR CNRS 6144*)

- Etude des bandes impactées par l'absorption d'humidité
- **Quantification** de la teneur en eau dans les fibres (méthode multivariée)



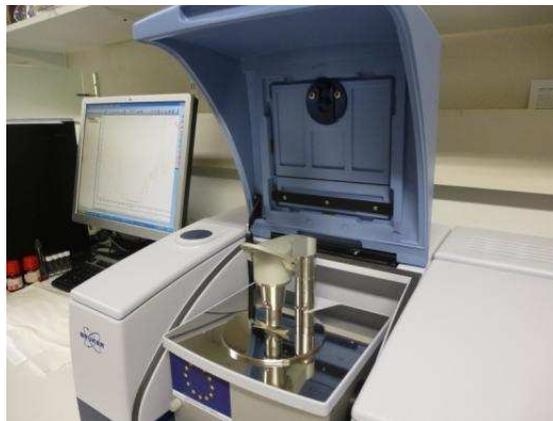
[Céline et al., Carbohyd. Polym., 2013]



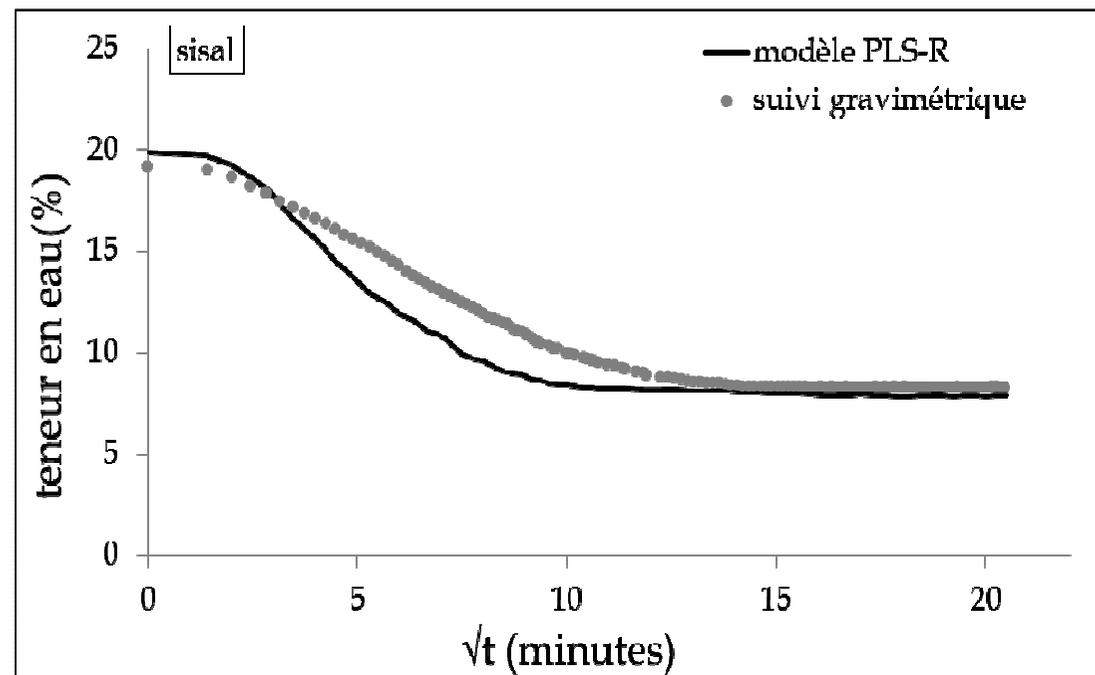
# Principaux résultats : fibres végétales

Etude du phénomène de diffusion par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (*collaboration GEPEA UMR CNRS 6144*)

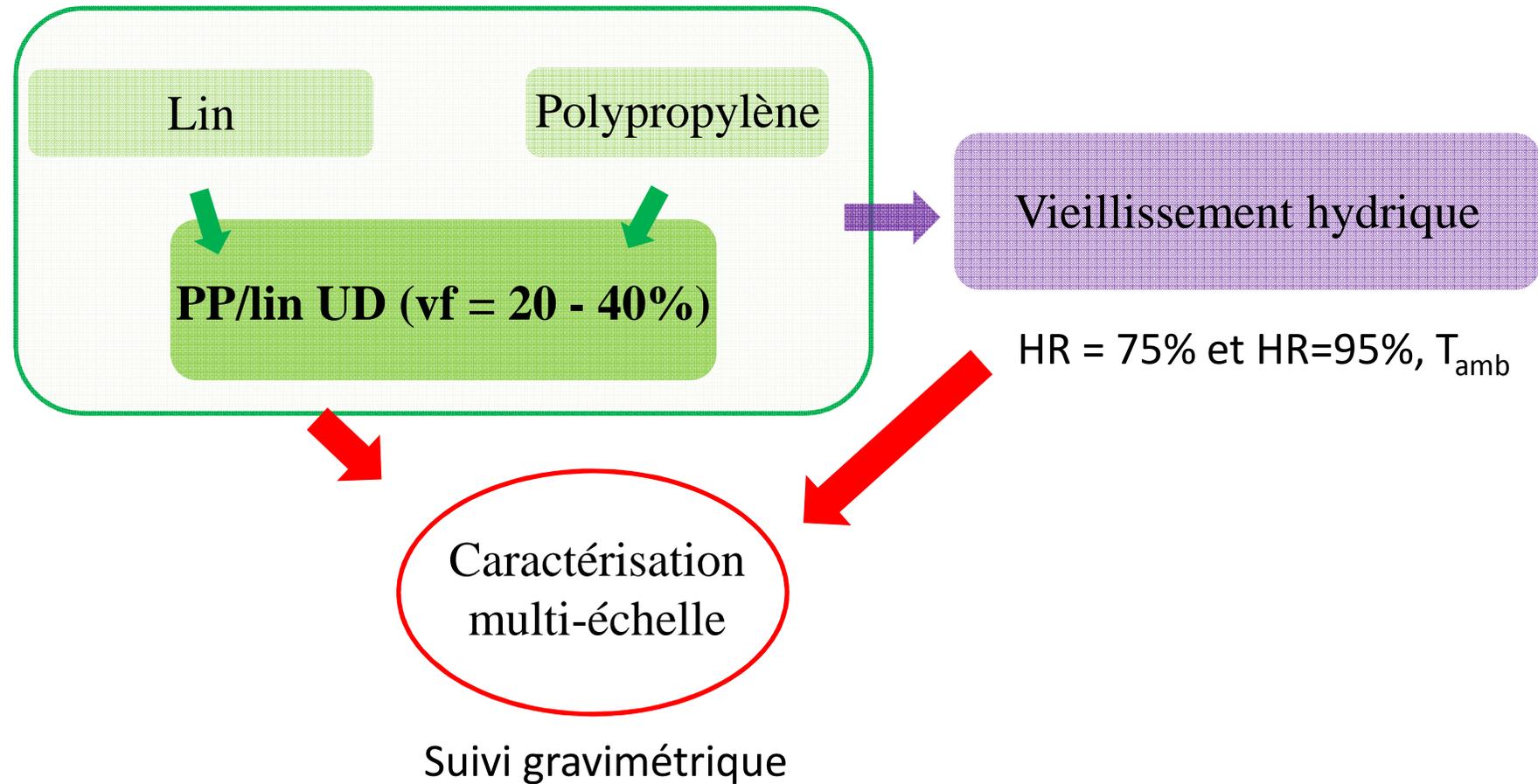
- Etude des bandes impactées par l'absorption d'humidité
- **Quantification** de la teneur en eau dans les fibres (méthode multivariée)



[Céline et al., Carbohydr. Polym., 2013]

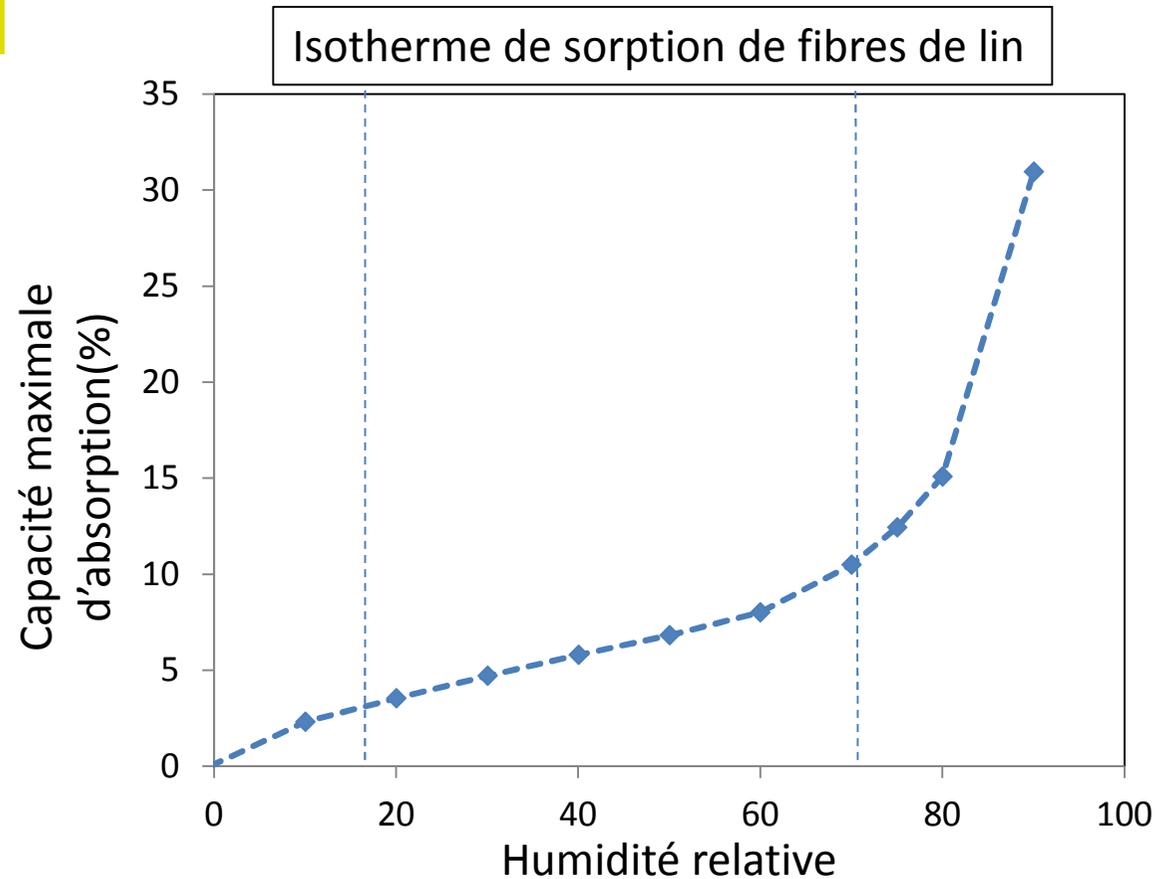


# Principaux résultats: caractérisation multi-échelle du comportement diffusif (Thèse Z. El Hachem)



# Principaux résultats : isotherme de sorption

Fibres: DVS

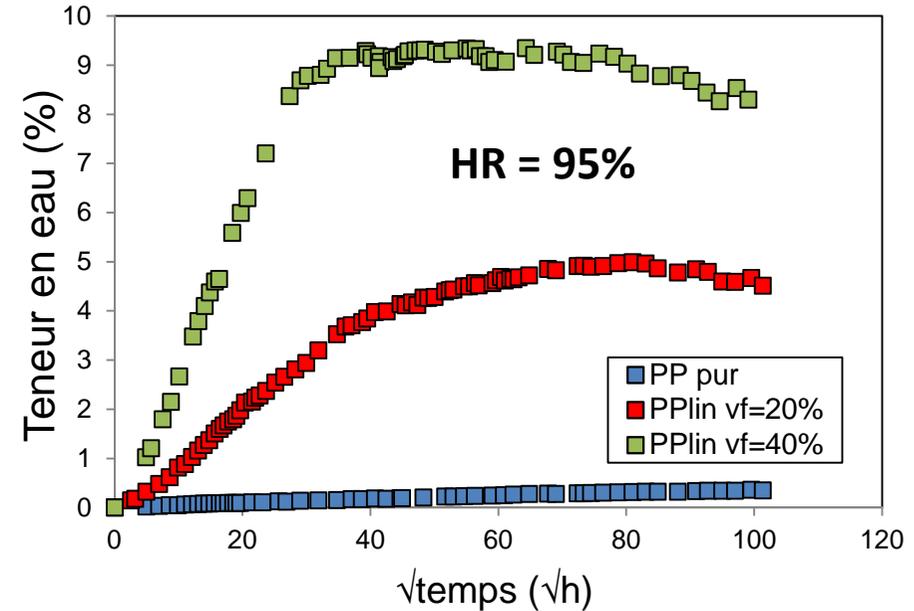
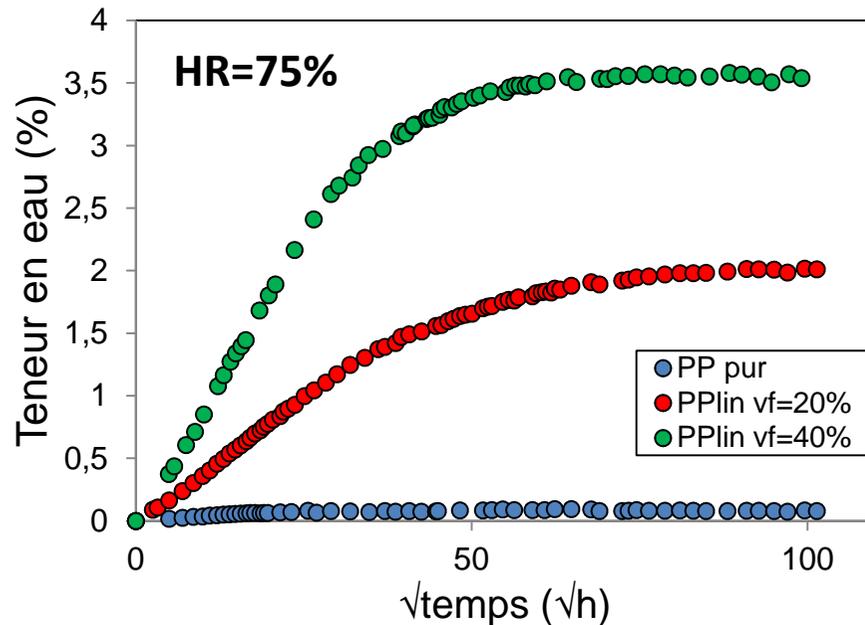


3 modes de diffusion:

- **HR<15%** : Augmentation faible: fixation sur des sites spécifiques
- **15%<HR<70%** : rupture de chaînes secondaires et création de canaux
- **HR>70%** : formation de clusters de molécules d'eau

# Principaux résultats: cinétiques de diffusion (effet de la fraction volumique de fibre)

PP/lin (UD, film stacking) – suivi gravimétrique – Humidité Relative



- Les fibres de lin pilotent le phénomène de diffusion
- Augmentation de la capacité maximale d'absorption avec la fraction volumique de fibres

# Principaux résultats: effet de confinement

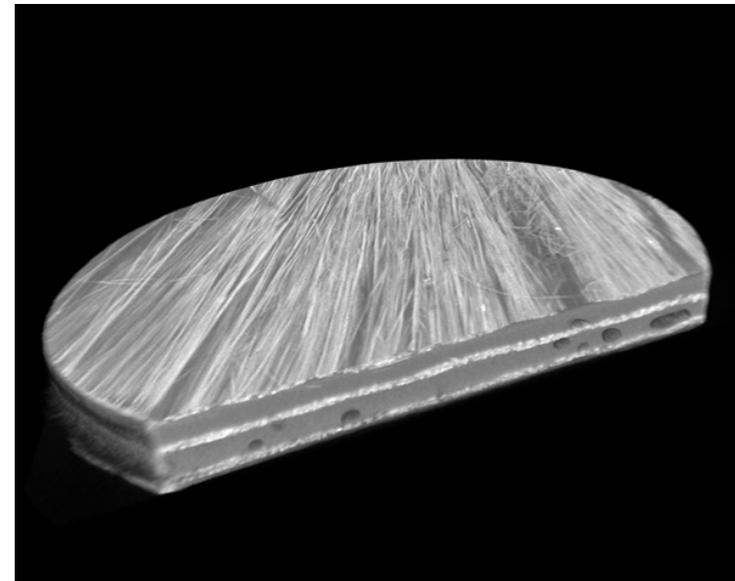
## loi des mélanges

$$C_{\text{comp}} = v_f * C_f + (1 - v_f) * C_m$$

$$C_f = 12,45\%$$

$$C_m = 0,08\%$$

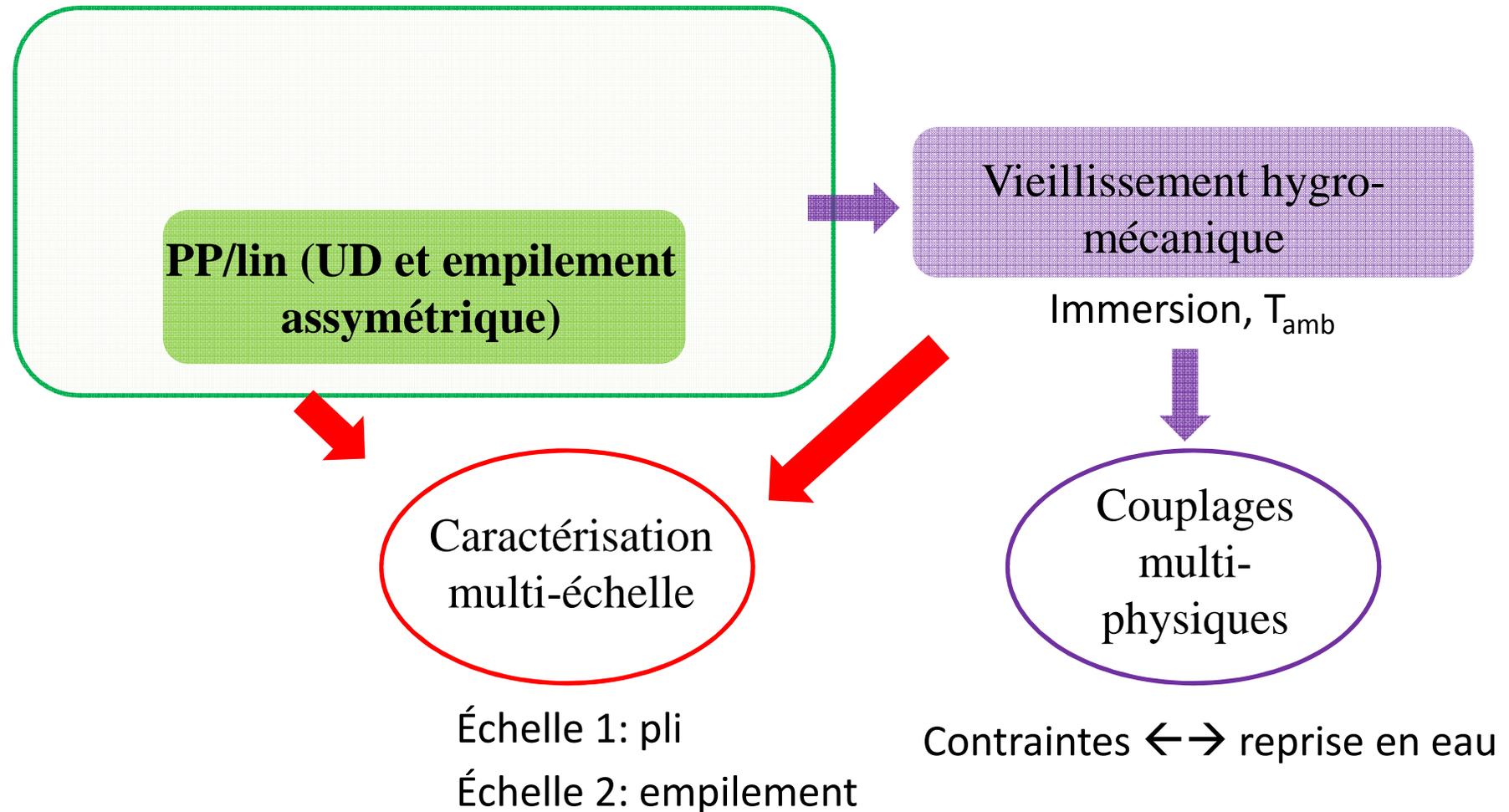
Image tomographie PP/lin (vf=20%)



Type de matériau	HR= 75%	
	Expérimental / modèle	
PPlin20	1,99±0,07	<b>2,55</b>
PPlin 40	3,55±0,01	<b>5,02</b>

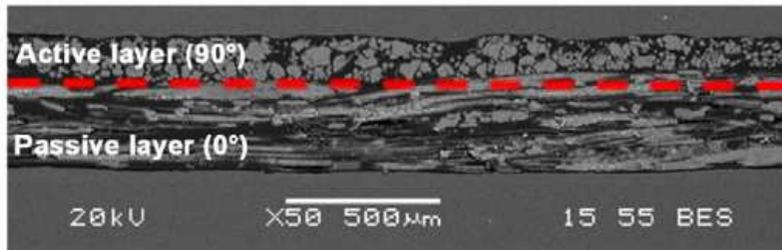
Quel modèle d'homogénéisation?  
Comment tenir compte de l'interface?  
Prise en compte de la microstructure

# Principaux résultats: empilements non symétriques pour l'étude des couplages hydro-mécaniques (collaboration IRDL)



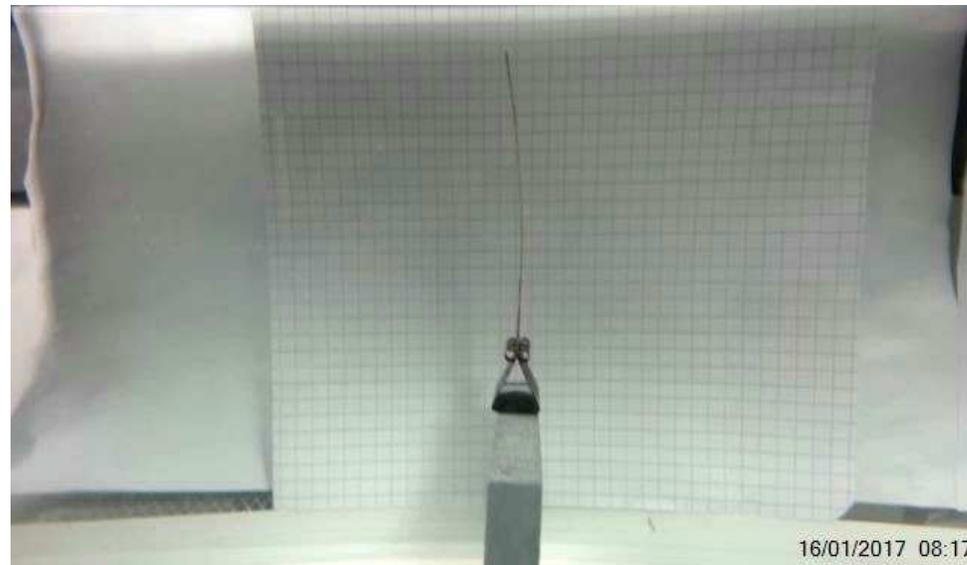
# Principaux résultats: empilements non symétriques pour l'étude des couplages hygro-mécaniques (collaboration IRDL)

Actionneurs hygromorphes = stratifiés bilames (bio inspiration)



1 couche passive + 1 couche active dont le rapport d'épaisseur est optimisé

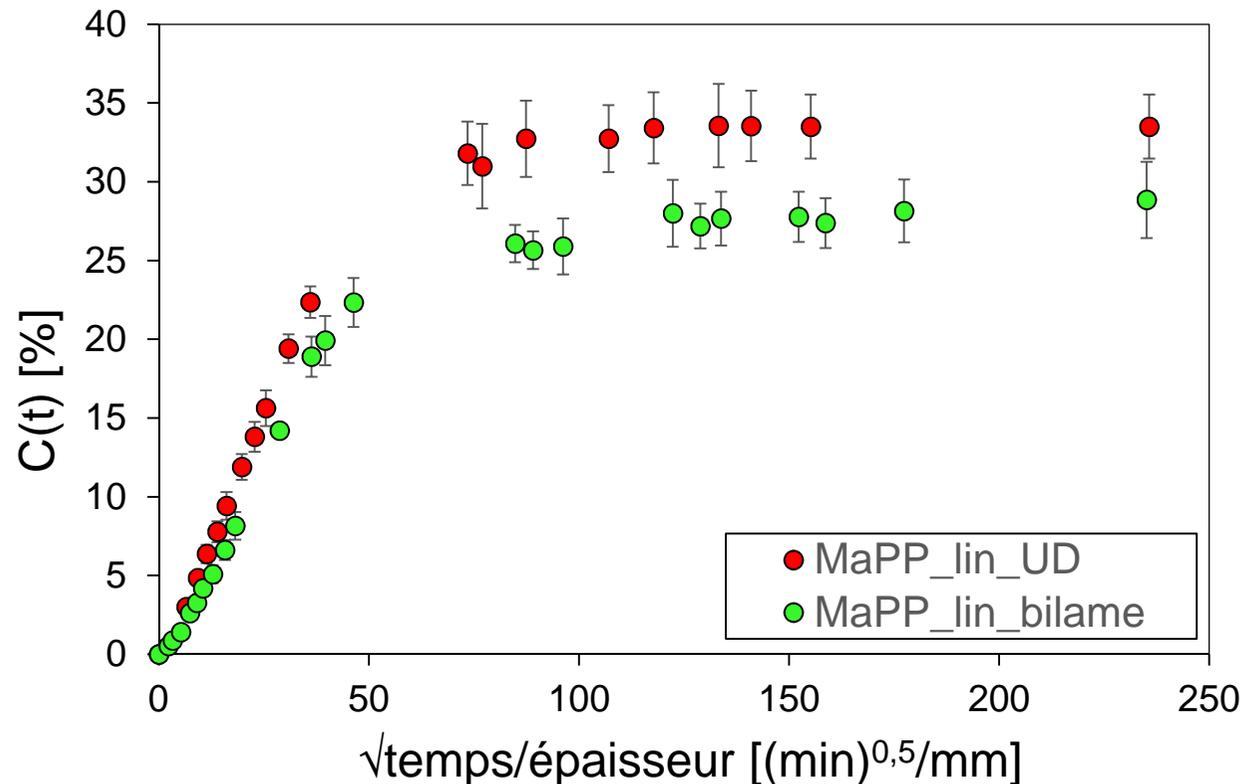
Le Duigou et Castro, 2017



Moment de flexion induit par la reprise en eau (phénomène transitoire)

# Principaux résultats: cinétiques de diffusion (effet de l'empilement)

UD / composite asymétrique : bilame (PP/lin vf=40%)



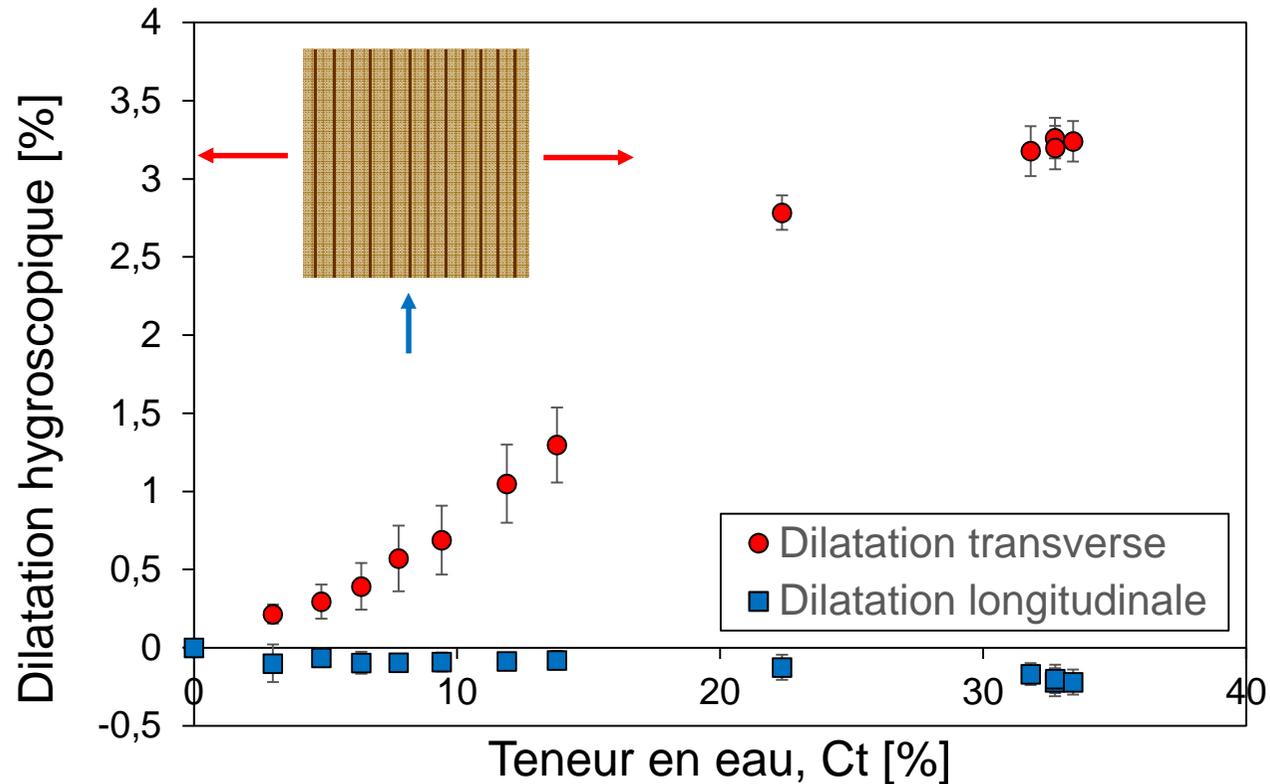
Absorption d'eau impactée par l'orientation des plis

➔ Etat de contraintes

Détermination des coefficients de diffusion D et de la capacité maximale d'absorption Cs

# Principaux résultats: gonflement hygroscopique

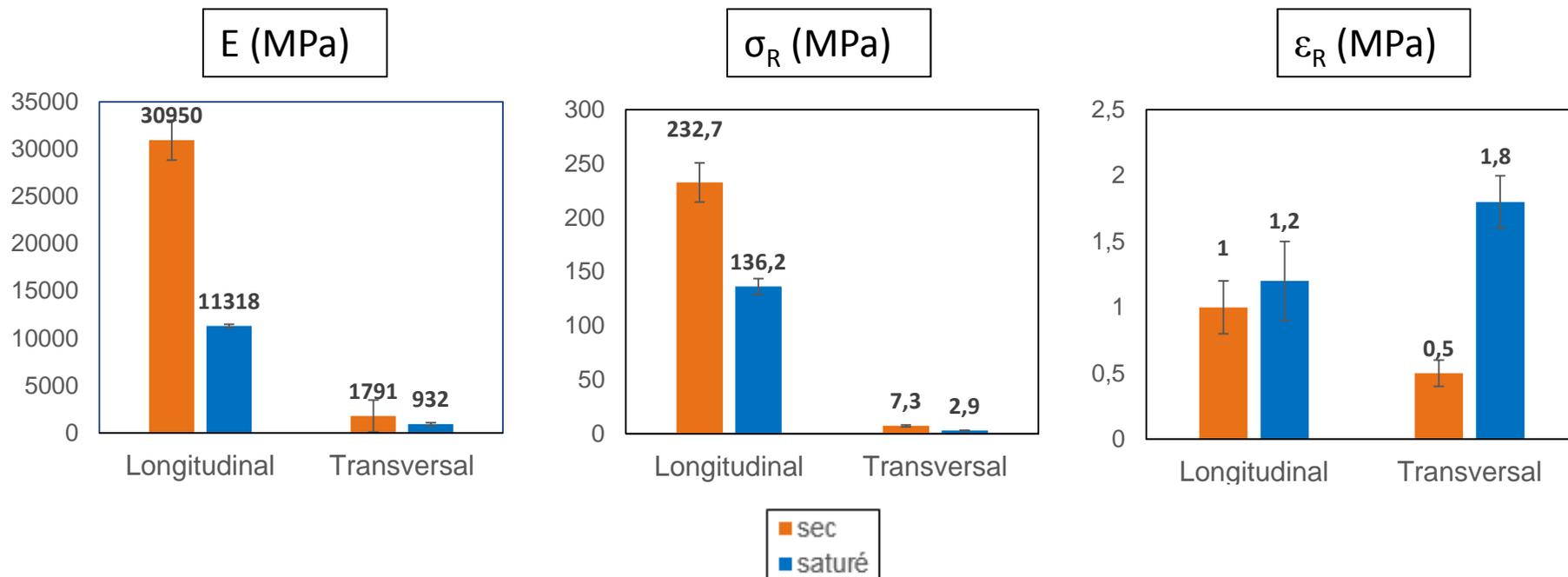
Composite UD (PP/lin vf=40%)



Dilatation hygroscopique **anisotrope**  
Détermination du coefficient de dilatation hygroscopique  $\beta$

# Principaux résultats: influence de l'humidité sur les propriétés mécaniques

## Propriétés en traction



Abattement des propriétés mécaniques:  $E \downarrow$ ,  $\sigma_R \downarrow$ ,  $\epsilon_R \uparrow$   
→ Plastification?

# Principaux résultats: modélisation des contraintes mécaniques d'origine hygroscopiques

## Objectif

Prédire les contraintes d'origine hygroscopique dans le stratifié

## Méthode

Théorie classique des stratifiés (Péron et al., 2017)

$$\sigma = C(\varepsilon - \varepsilon^{hy})$$

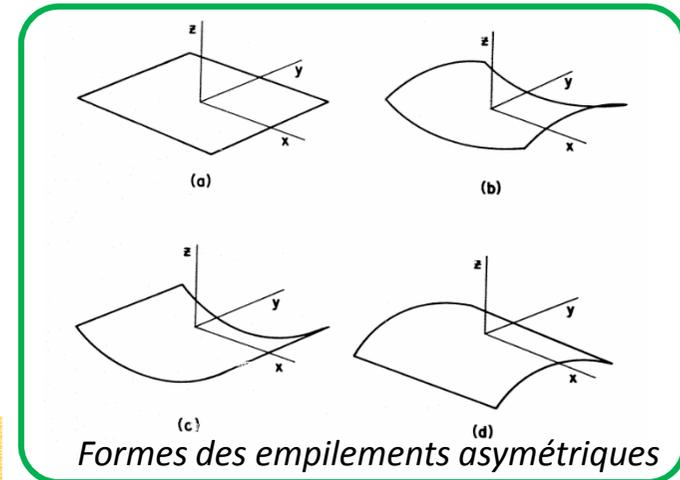
Tenseur de raideur = f(Ct)

$$\varepsilon^{hy} = \beta \Delta c$$

Coefficient de dilatation hygroscopique

Teneur en eau

## Théorie Classique des Stratifiés (CLT)

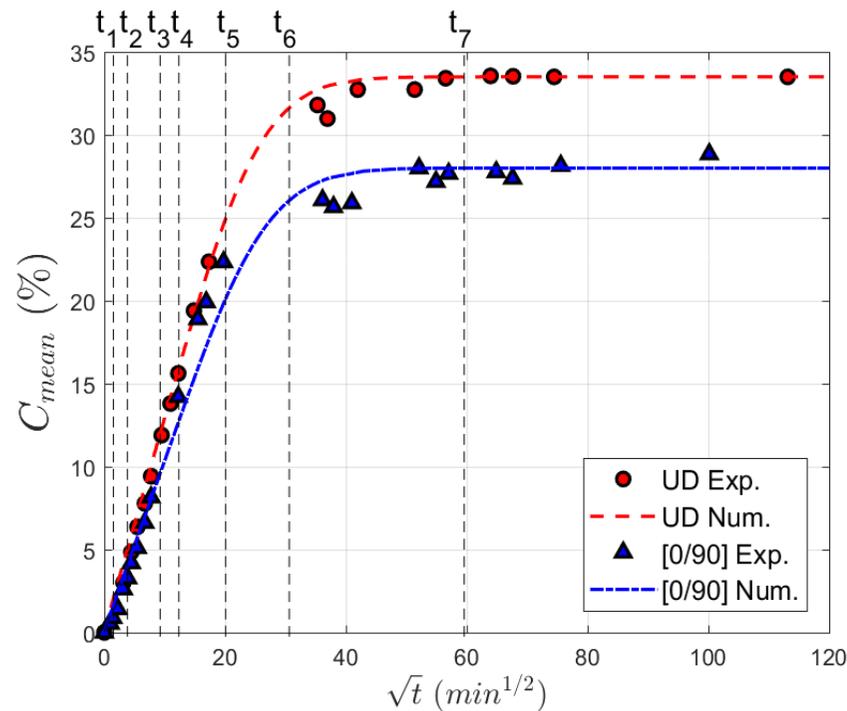


### Prise en compte:

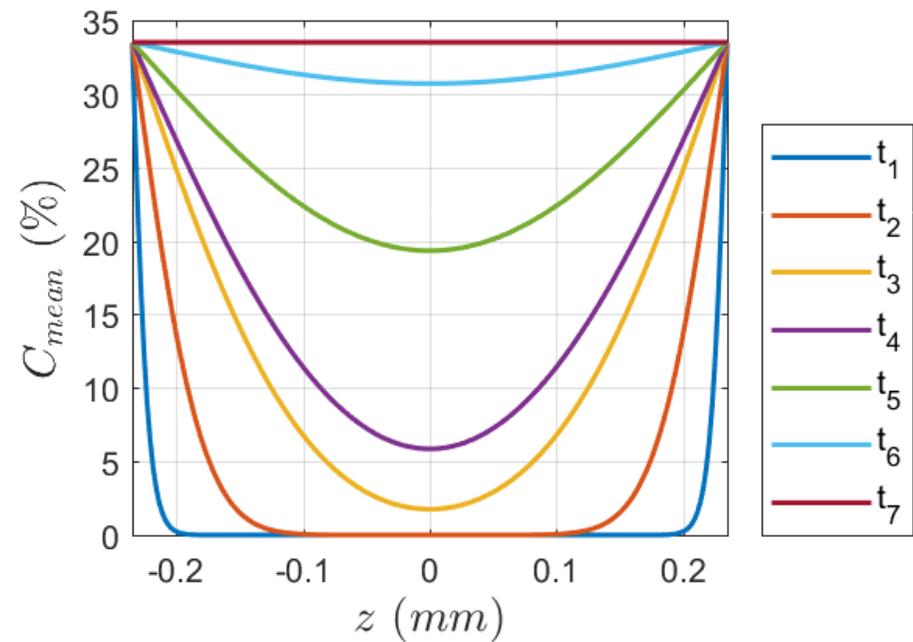
- Propriétés dépendantes de la teneur en eau
- Dilatations hygroscopique
- Gradient de teneur en eau

# Principaux résultats: modélisation des contraintes mécaniques d'origine hygroscopiques

Teneur en eau macroscopique



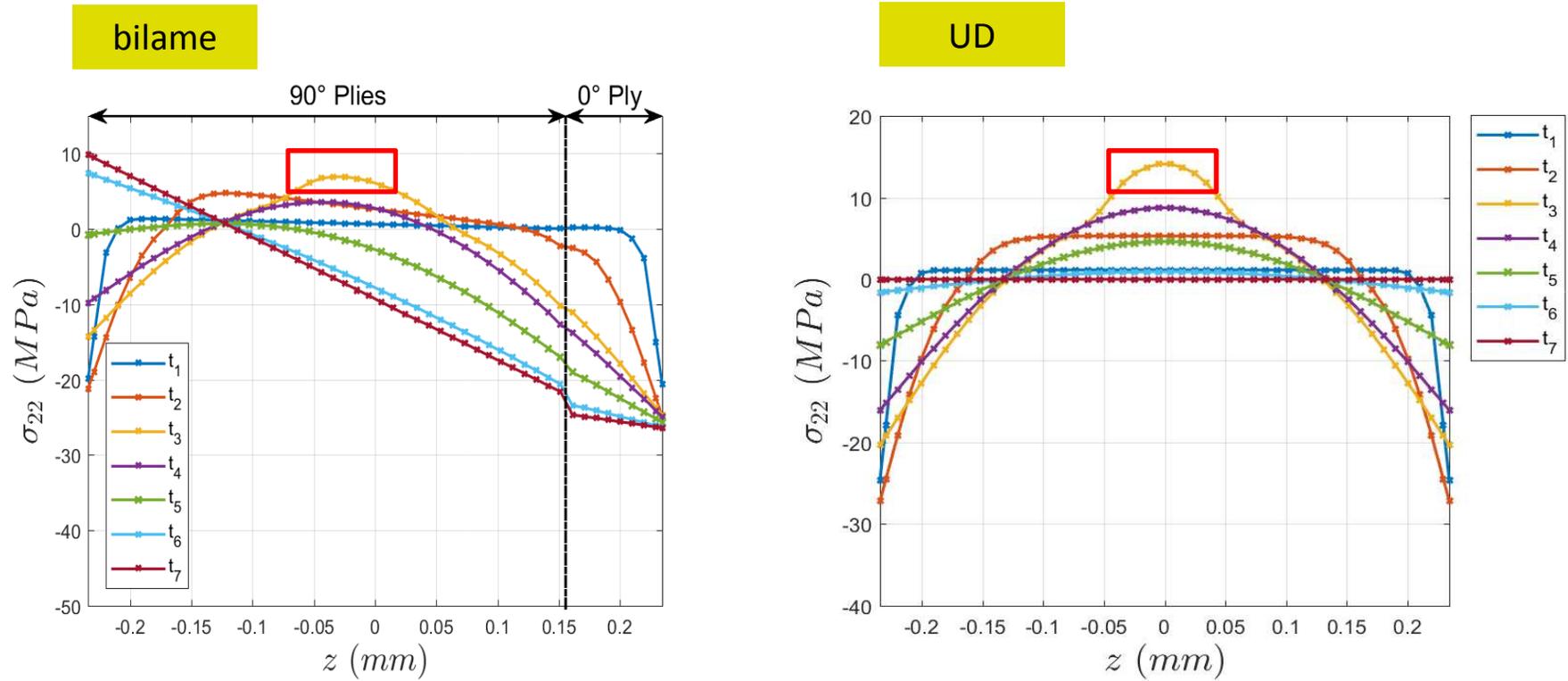
Gradient de teneur en eau locale



Gradient de teneur en eau locale induisant un gonflement différentiel responsable de l'apparition de contraintes internes

# Principaux résultats: modélisation des contraintes mécaniques d'origine hygroscopiques

Distribution des contraintes transverses aux fibres (repère local)



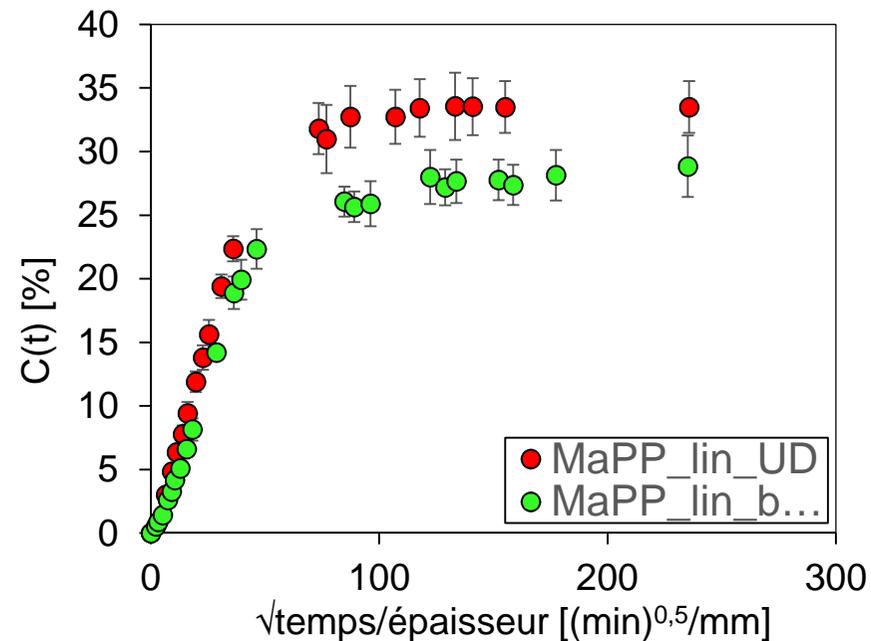
[Péron et al., Comp. Sci. Tech., 2018]

		E (MPa)	$\epsilon_R$ (%)	$\sigma_R$ (MPa)
<b>Sec</b>	Transversal	1791±180	0,5±0,1	7,3±0,9
<b>Humide (C=33.5 ± 2.1 %)</b>	Transversal	932±146	1,8±0,2	2,9±0,2

# Principaux résultats: modélisation des contraintes mécaniques d'origine hygroscopiques

## Bilame

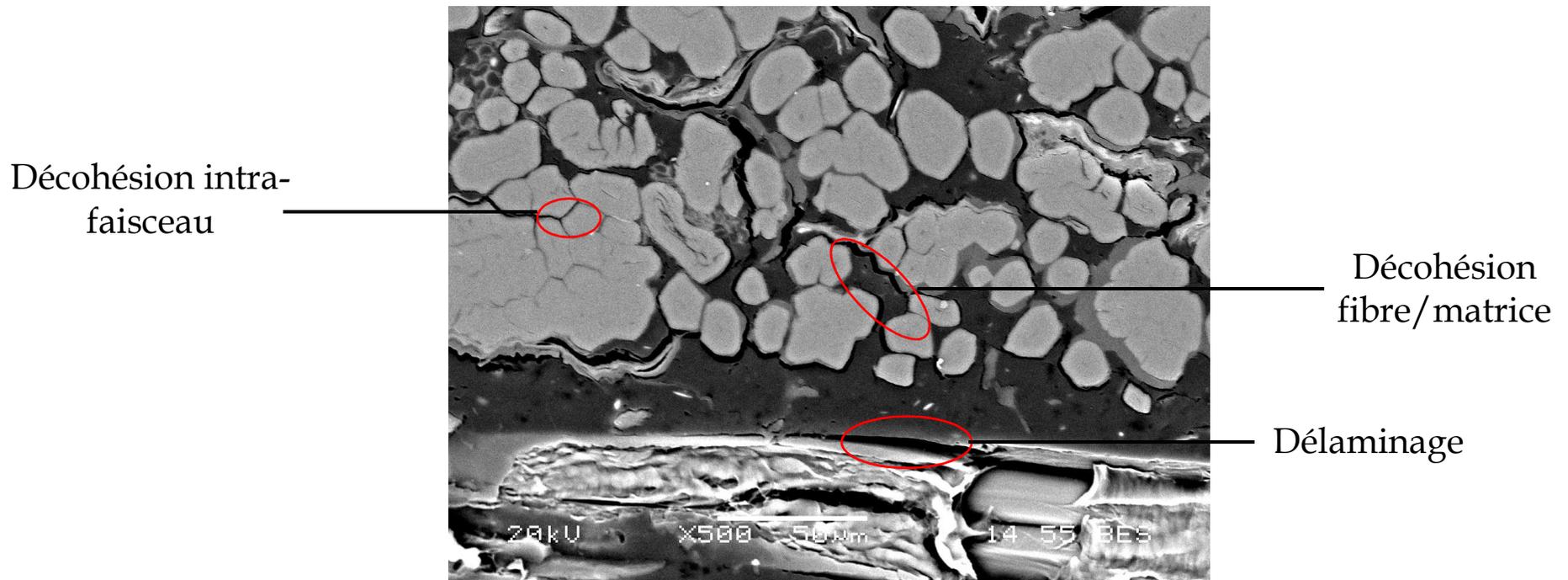
Majeure partie des plis en compression → diminution du **volume libre** et diminution de la **capacité maximale d'absorption**.



# Principaux résultats: modélisation des contraintes mécaniques d'origine hygroscopiques

## Bilame

- ➔ Phénomènes d'endommagement à cause des niveaux de contraintes atteints (*lessivage, contraintes à l'interface fibre/matrice*)



*Image MEB PPgMa/lin après sorption*

# Conclusions

## Conclusions

Fort potentiel des matériaux composites renforcés par des fibres de lin

Comportement hydrophile marqué des fibres végétales et leurs composites

Effet de confinement des fibres dans le composite

Absorption d'eau dans un composite biosourcé génère des contraintes internes significatives au cours du phénomène de diffusion par gonflement différentiel

Capacité maximale d'absorption d'un biocomposite est dépendante des états mécaniques générés ( $\neq$  significative entre un UD et un composite assymétrique)

# Besoins en CND dans les biocomposites

## Bilan

- Mesures du champs de teneur en eau/ évaluation des interphases (épaisseur, propriétés)
- Evaluation de la microstructure (taux de porosité, défauts...)
- Evaluation des endommagements liés à la reprise en eau (cycles sorption/désorption)

# Merci de votre attention

[amandine.celino@univ-nantes.fr](mailto:amandine.celino@univ-nantes.fr)

