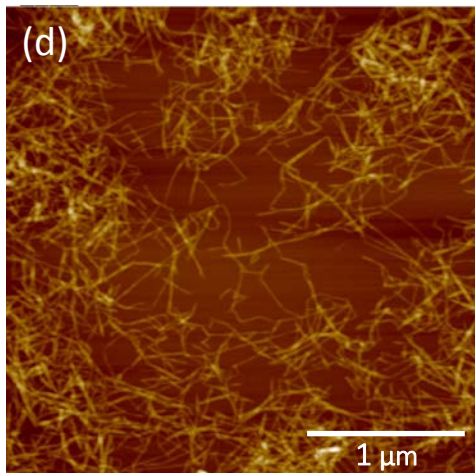


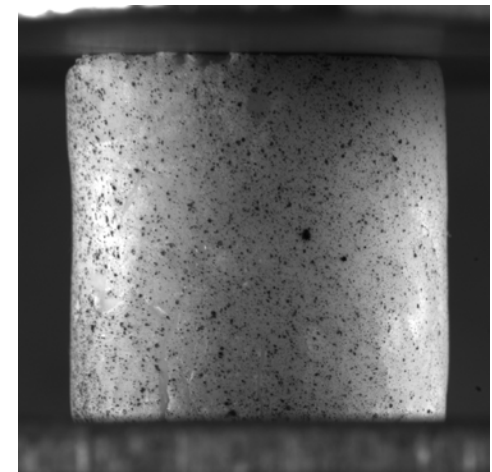
Quelques enjeux de l'élaboration, de la mise en forme et des propriétés en service des biocomposites

Pierre Dumont, Laurent Orgéas, Florian Martoia, Arnaud Regazzi

Univ. Grenoble Alpes LGP2/3SR



Juillet 2015



Les composites à base de matrice polymère et de renforts biosourcés

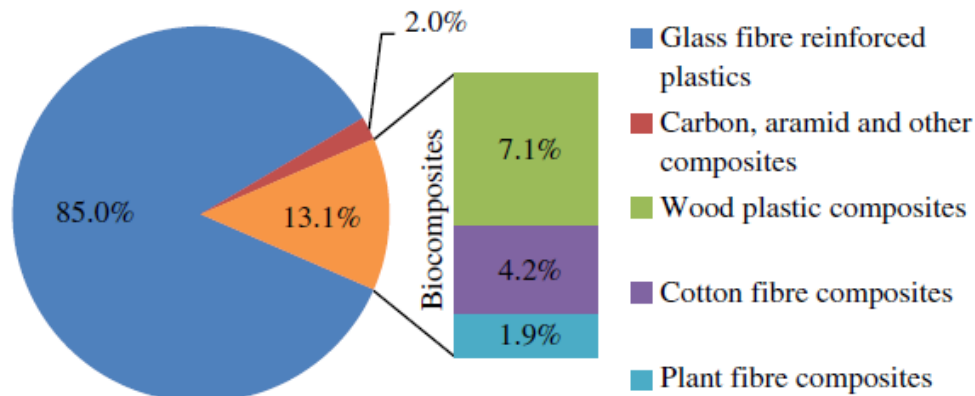


Fig. 1. PFRPs accounted for ~1.9% of the 2.4 million tonne EU FRP market in 2010 [6].

Shah et al., *Composites: Part B.*, 2013.

Objectifs : propriétés mécaniques équivalentes aux composites à fibre de verre

Quelques problématiques bien connues...

- ✓ Dispersion des propriétés surfaciques, morphologiques, mécaniques, etc. des fibres
- ✓ Propriétés cohésives et adhésives des interfaces

...Et des problématiques moins abordées

- ✓ Phénomènes d'hygroexpansion des fibres et des matrices
- ✓ Influence des conditions de **mise en forme**

Les composites à base de matrice polymère et de renforts biosourcés

Comment améliorer les propriétés des composites à renforts biosourcés ?

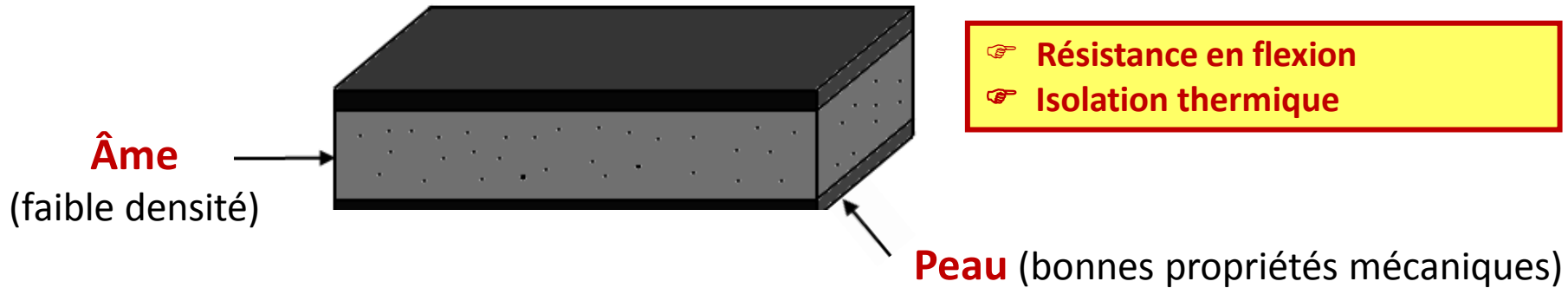
➤ Tirer partie des

- ✓ **propriétés spécifiques** importantes des nano et microrenforts extraits des fibres naturelles
 - Propriétés à l'état natif** des matériaux p. ex. à l'état pulvérulent (poudre d'amidon)
- ✓ « **Défauts** » de ces matériaux

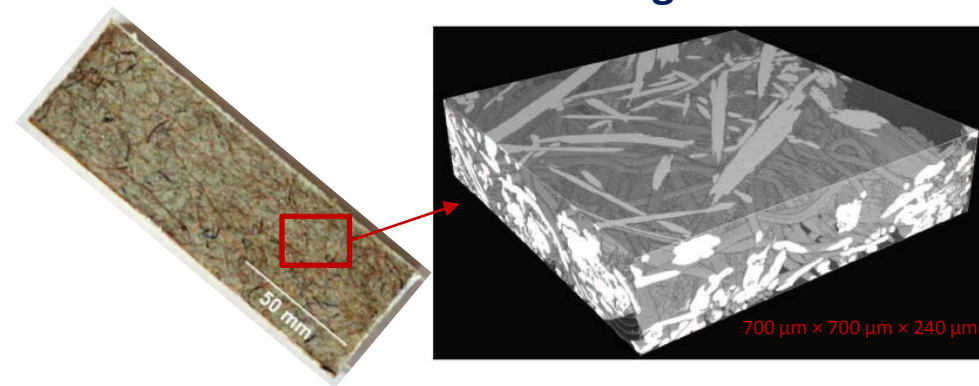
✓ Améliorer les procédés d'élaboration

- ✓ Pour un contrôle accru des **propriétés microstructurales**

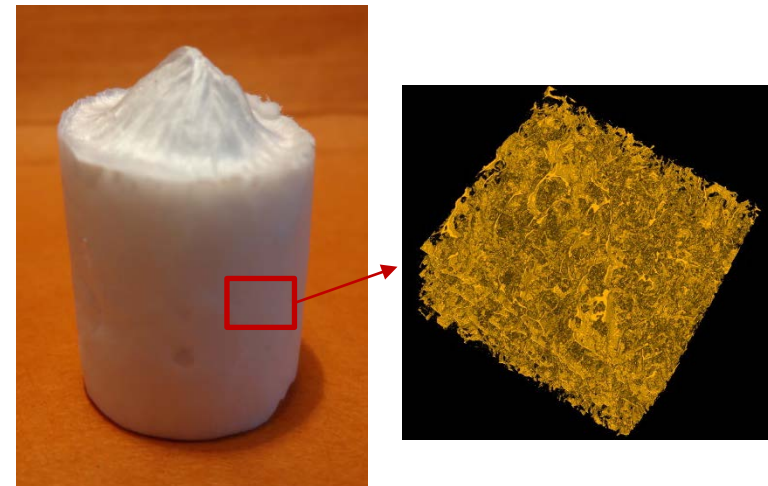
Pour aller vers une structure sandwich biosourcée



Polymère renforcé + mats/tissus/UD
de fibres végétales

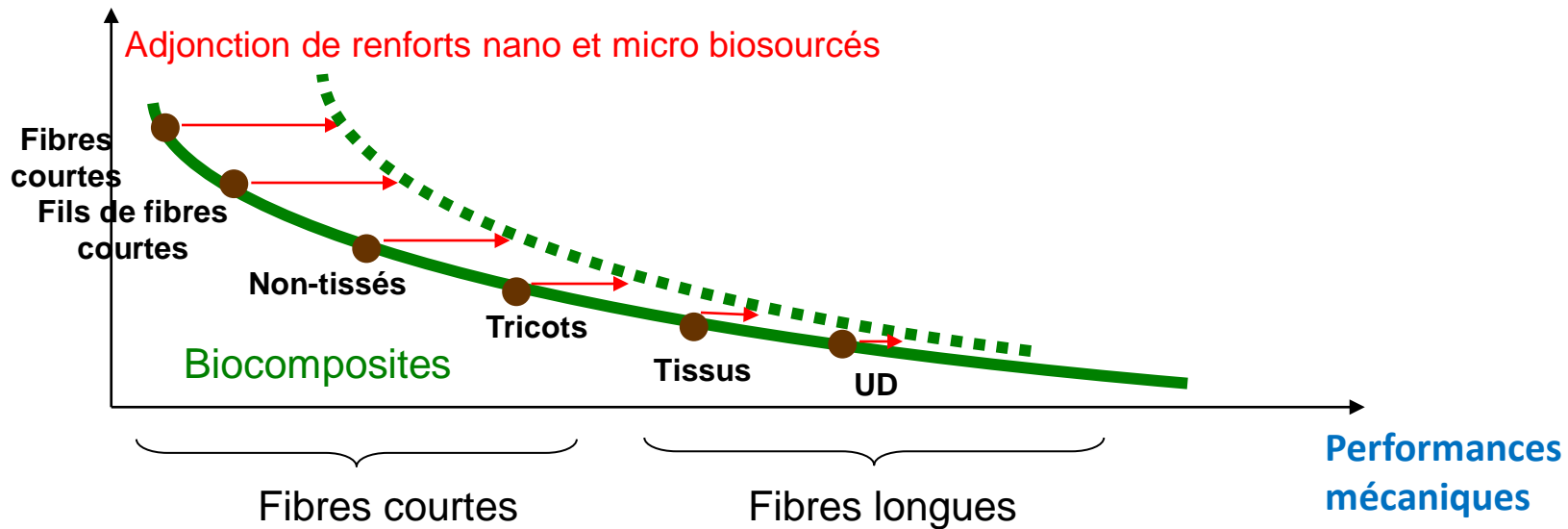


NFC foams



Peau de sandwich renforcée

Complexité géométrique



👉 Objectifs : composites à multi-échelles de renforts dont les propriétés mécaniques sont équivalentes aux composites « traditionnels » à fibres de verre

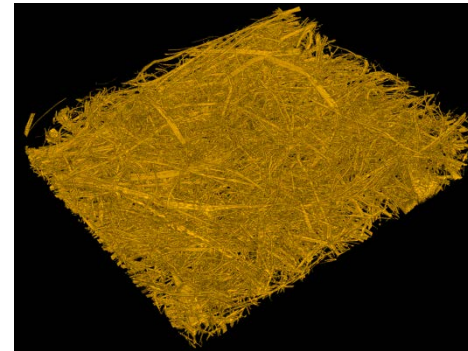
Peau de sandwich renforcée

Imprégnation of de renforts de fibres naturelles par des matrices polymères renforcées par des nano et microfibrilles de cellulose

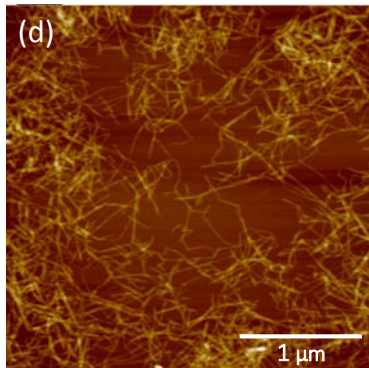


Paroi des fibres

Zhu et al., *Energy Environ. Sci.*, 2014



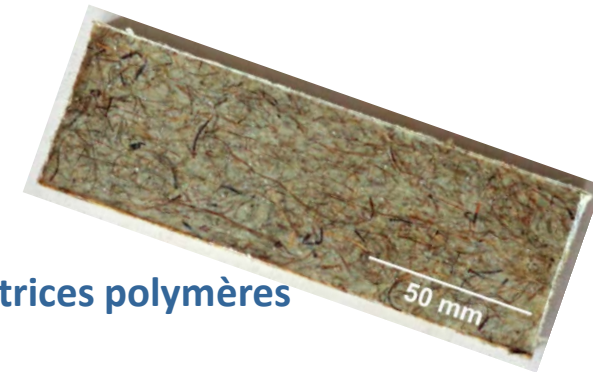
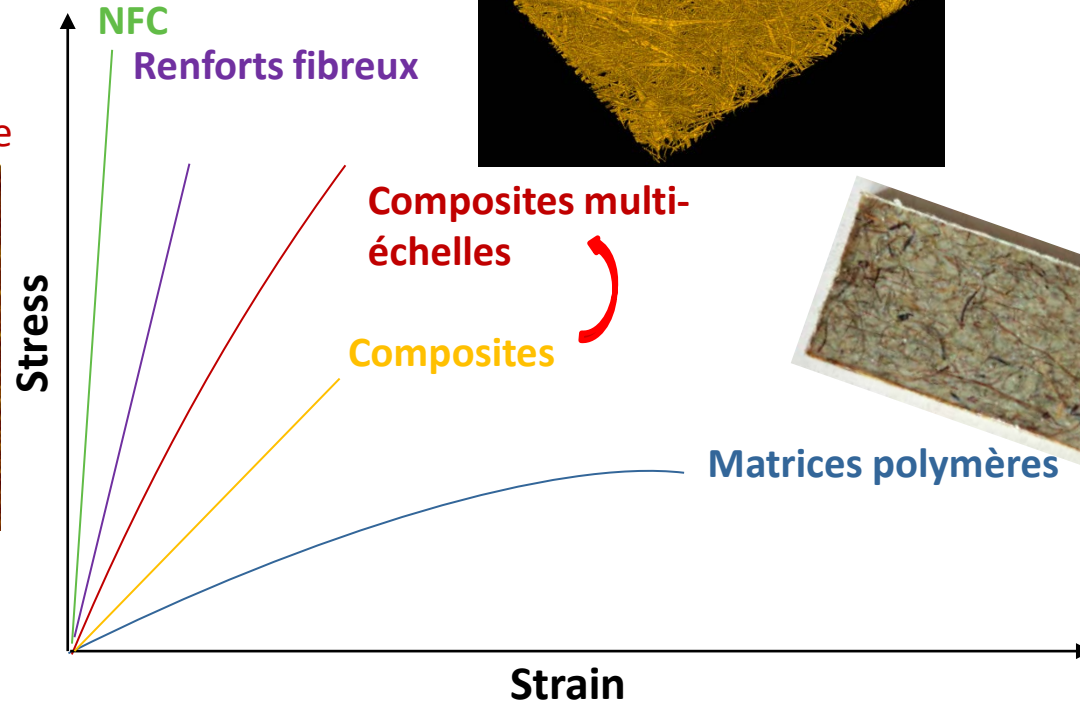
Nanofibrilles de cellulose



$E \approx 80 \text{ GPa}$

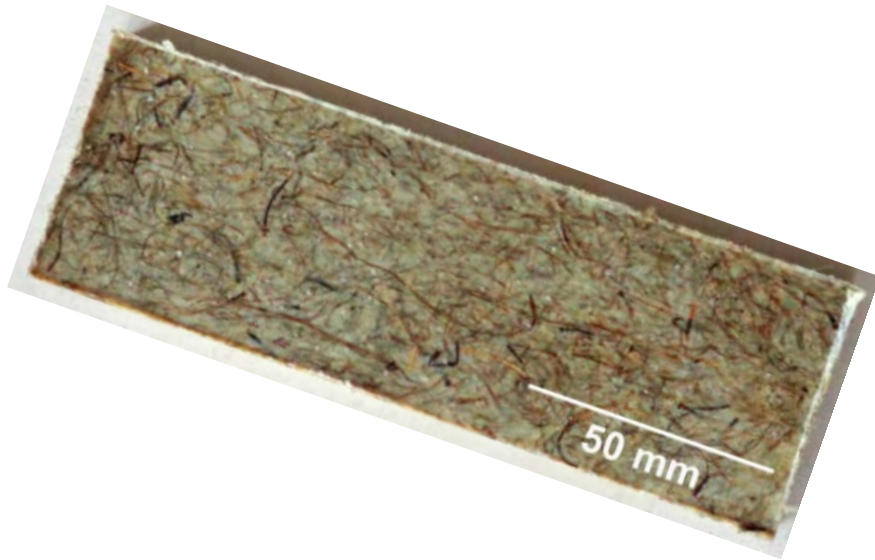
$\sigma \approx 1 \text{ GPa}$

$l/d \approx 100 \text{ to } 500$

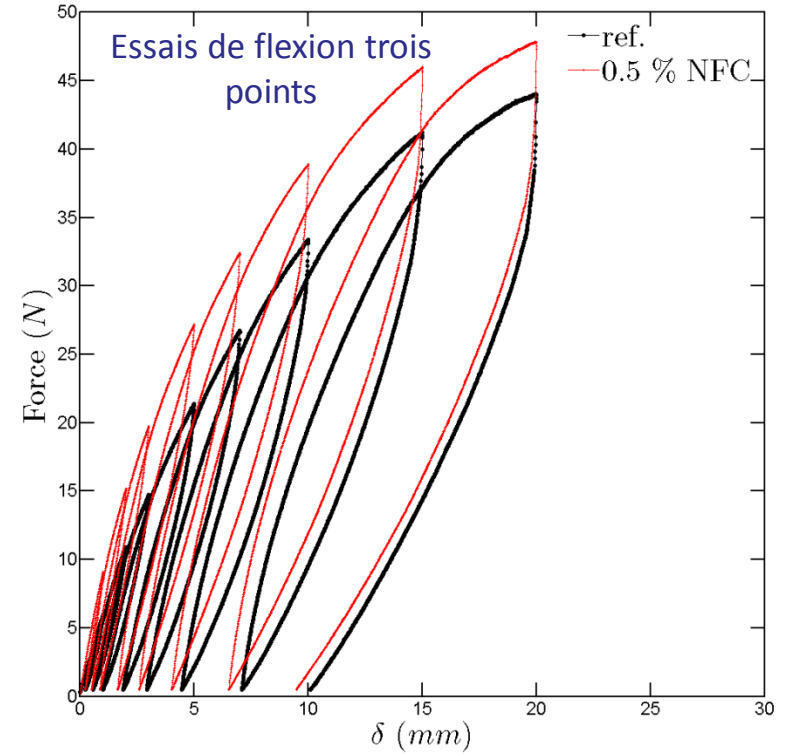


- ➡ Renforts multi-échelles
- ➡ Composites biosourcés avec une plus grande raideur et une ténacité accrue

Peau de sandwich renforcée



Thèse F. Martoia (2015)



➡ Amélioration de E et F

Peau de sandwich renforcée

Elaboration de semi-produits

- **Option 1 : poudre biosourcée semi-cristalline à l'état natif + imprégnation par voie sèche**
- **Option 2 : matrice renforcée de NFC+ imprégnation par voie liquide**

Mise en forme des semi-produits

- **Caractérisation des microstructures et de leur évolution sous chargements thermo-hygromécaniques**
- **Procédé de compression-estampage**

Option 1 - Elaboration des semi-produits : matrice renforcée + renforts de fibres végétales (voie sèche)

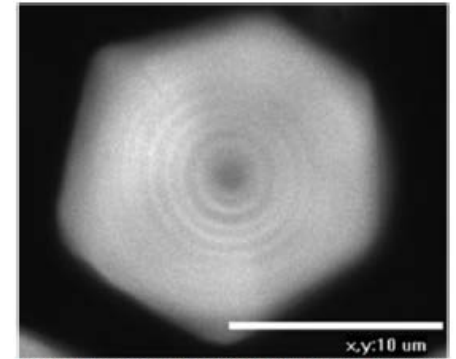
- Verrou : conserver la cristallinité native de grains d'amidon

Post-doc A. Regazzi (2015)
IE M. Teil (2015)

Thermocompression



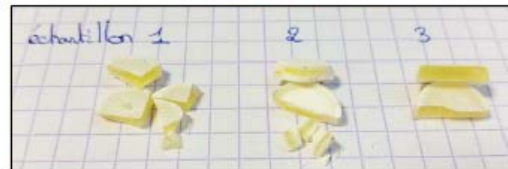
Frittage ultrasons



Confocal laser scanning micrographs of the internal structure of regular maize starch
<http://dx.doi.org/10.1016/j.foodhyd.2012.11.032>



≈ 100°C – 15% WC – 25-100 MPa – 1h

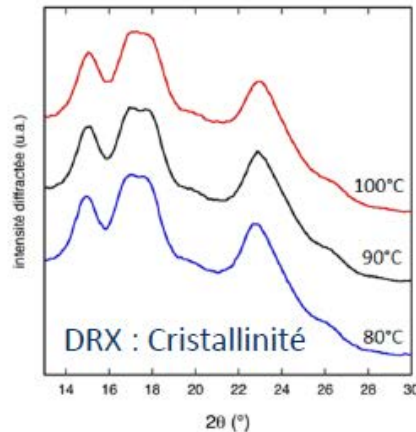
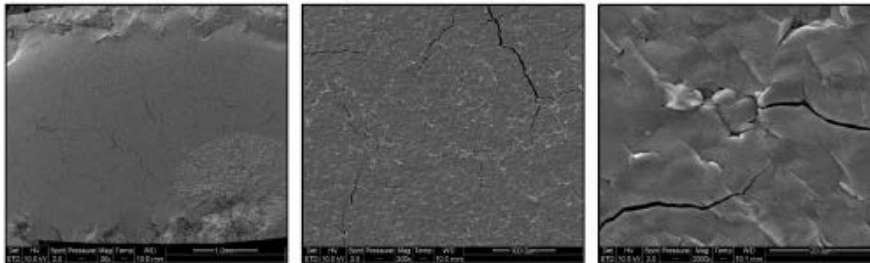


Option 1 - Elaboration des semi-produits : matrice renforcée + renforts de fibres végétales (voie sèche)

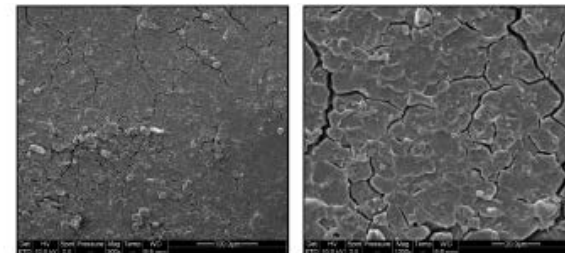
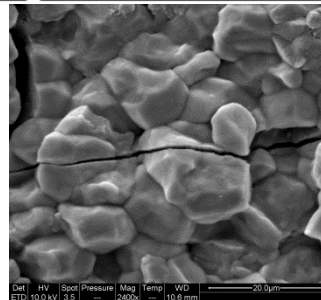
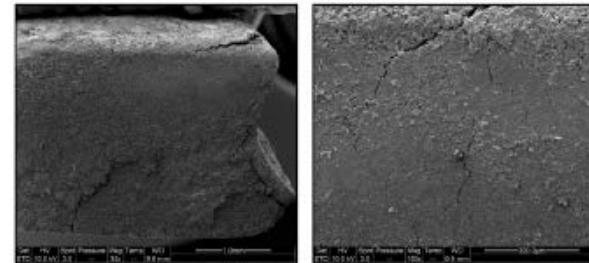
Post-doc A. Regazzi (2015)
IE M. Teil (2015)

➤ Verrou : assurer une bonne soudure des grains

Thermocompression



Frittage ultrasons

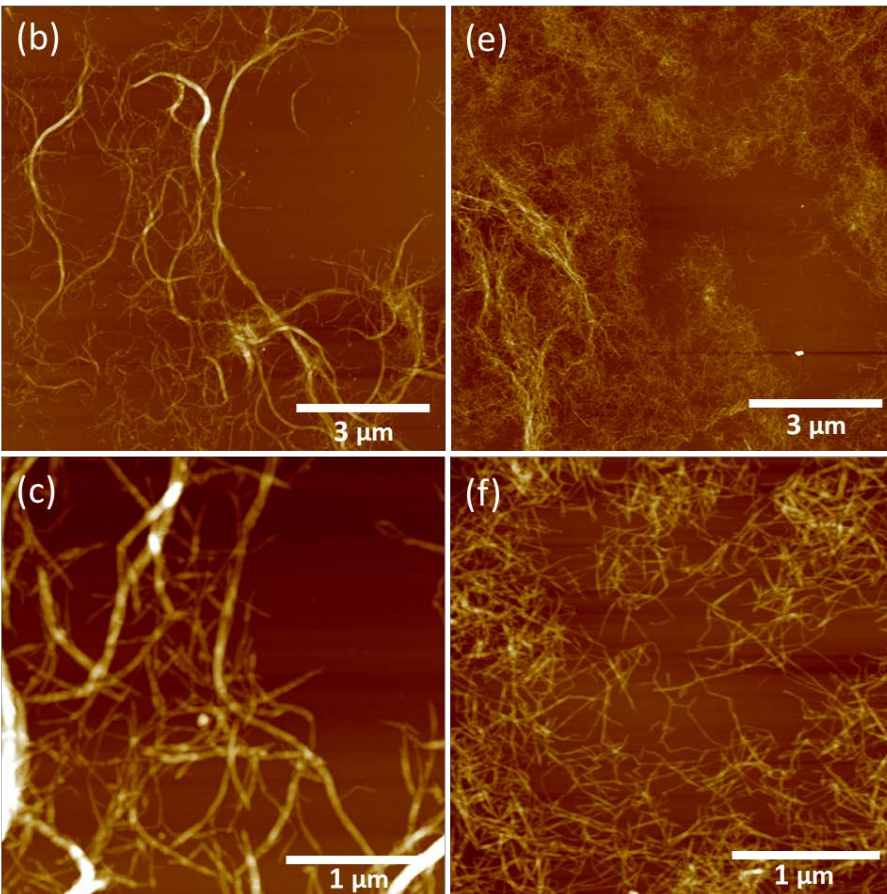


- Défauts à toutes les échelles
- Fracture intra-grains

Option 2 - Elaboration des semi-produits : matrice renforcée de NFC imprégnation par voie liquide

➤ Extraction des nano et microfibrilles de cellulose

Thèse F. Martoia (2015)



3 classes d'éléments pour des NFC enzymatiques

- Fibres partiellement fibrillées ($d \approx 20 \mu\text{m}$ and $l \approx 250 \mu\text{m}$)
- Mèches de fibrilles ($d > 100 \text{ nm}$ and $l \approx 1\text{-}10 \mu\text{m}$)
- Ind. fibrilles ($d \approx 30 \text{ nm}$ and $l < 5 \mu\text{m}$)

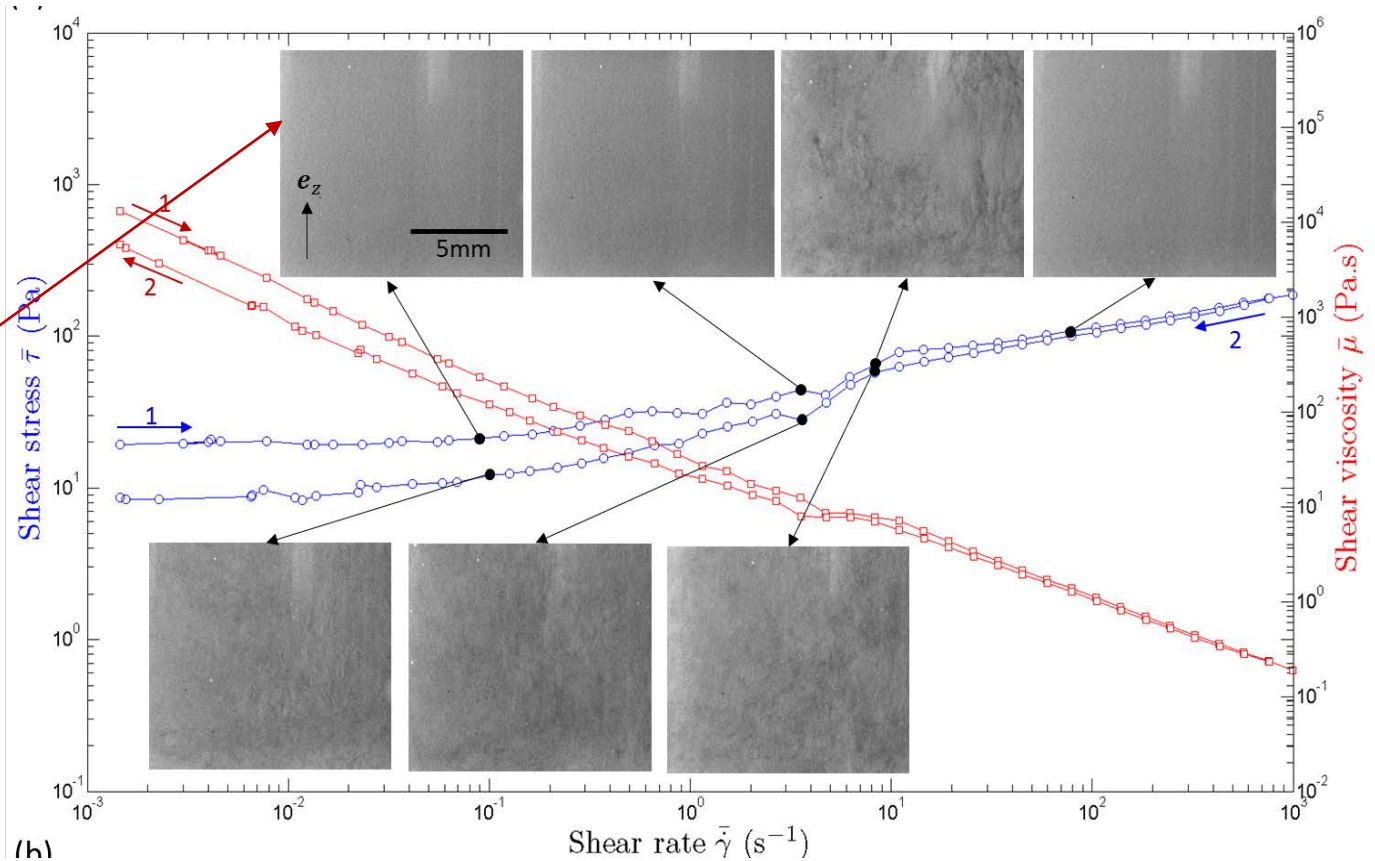
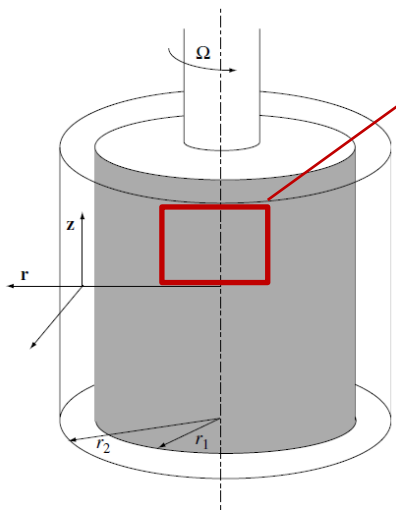
2 classes d'éléments pour des NFC TEMPO

- Fibres partiellement fibrillées ($d \approx 25 \mu\text{m}$ and $l \approx 600 \mu\text{m}$)
- Fibrilles individuelles ($d \approx 5 \text{ nm}$ and $l \approx 1.5 \mu\text{m}$)

Option 2 - Elaboration des semi-produits : matrice renforcée de NFC imprégnation par voie liquide

Thèse F. Martoia (2015)

➤ Rhéologie des suspensions de NFC

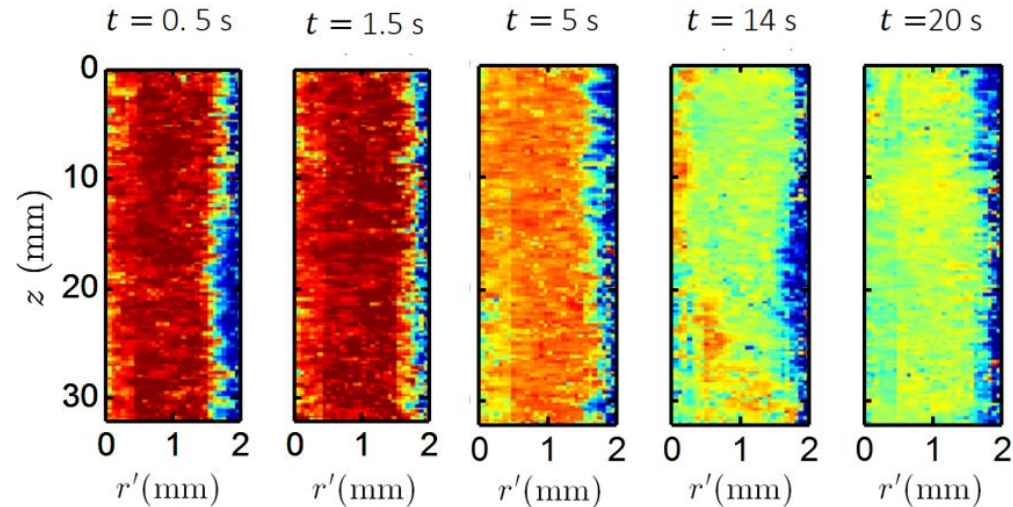
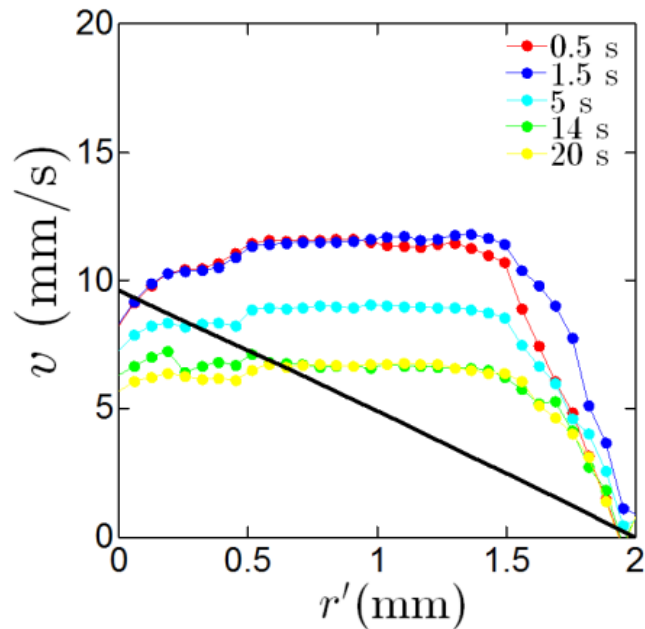


☞ Texture floculées
☞ Evolution de la mésostructure sous cisaillement

Option 2 - Elaboration des semi-produits : matrice renforcée de NFC imprégnation par voie liquide

➤ Rhéologie des suspensions de NFC

Thèse F. Martoia (2015)



- **Écoulements hétérogènes :**
 - Glissement aux parois
 - Co-existence de multiples bandes d'écoulement
 - Profils de vitesse \rightarrow vitesses plus fortes que la vitesse du rotor (écoulements 2D)

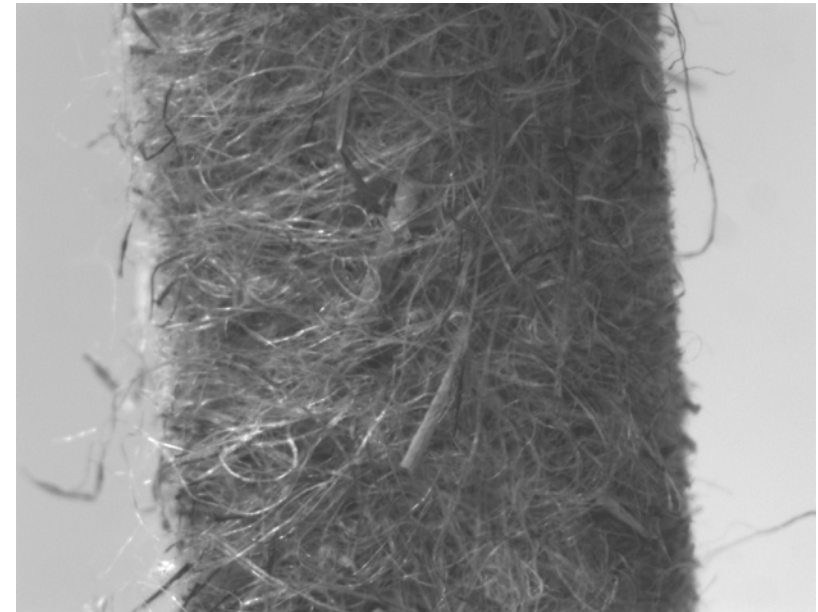
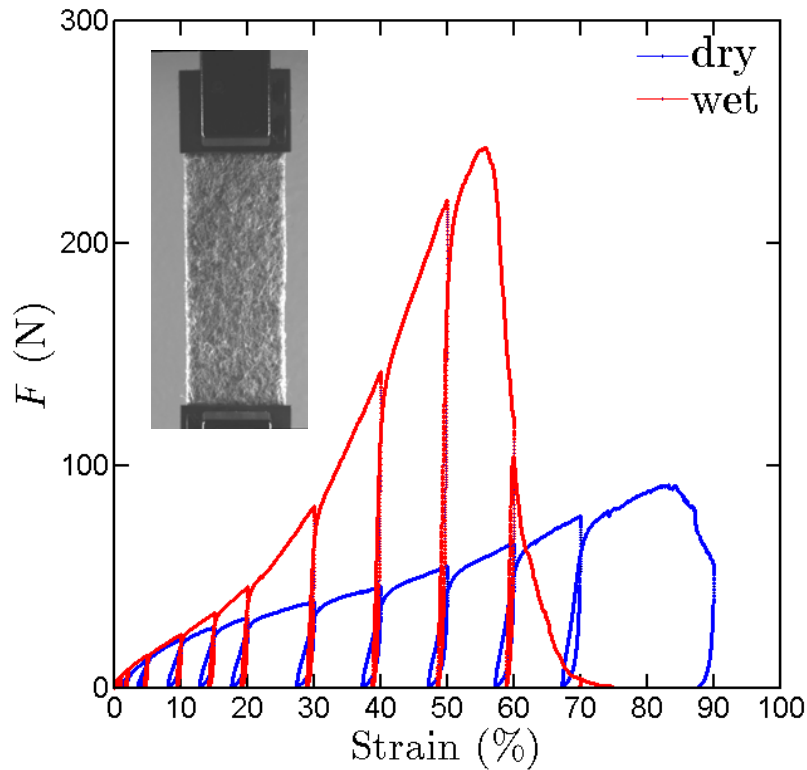


➡ Effets élastiques ou présence de mouvements rotationnels d'agrégats colloïdaux

Mise en forme des semi-produits

➤ Verrou : caractérisation des microstructures et de leur évolution

Thèse F. Martoia (2015)

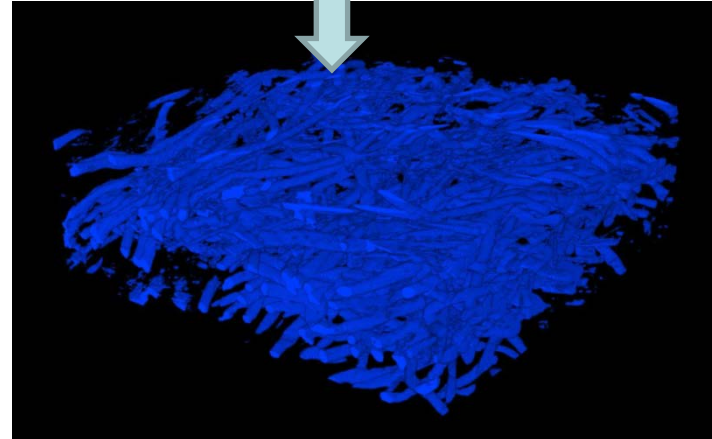
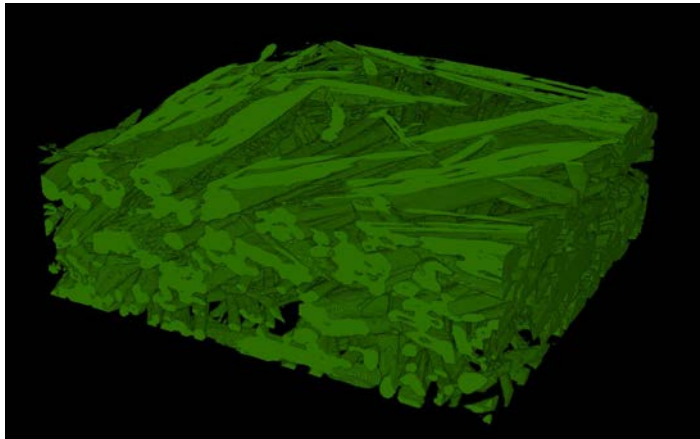
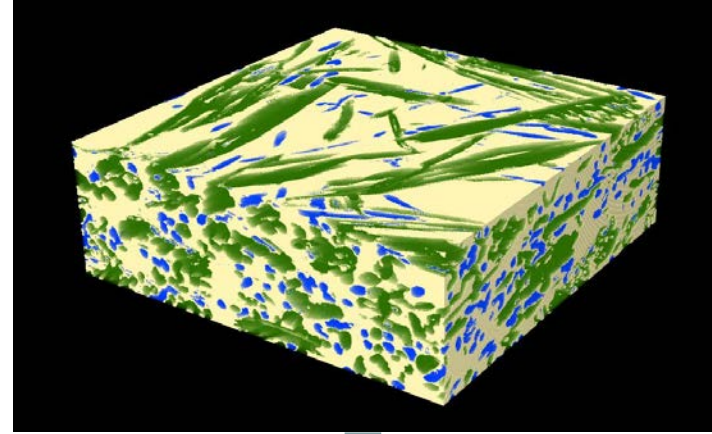
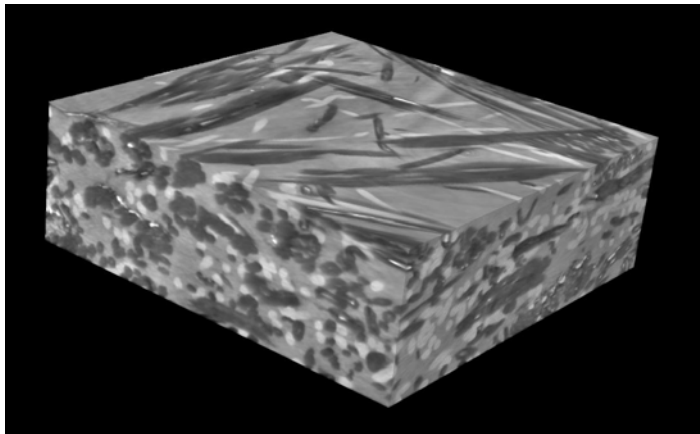


- **Comportement macroscopique complexe (écrouissage, comportement élasto-viscoplastique)**
- **Mécanismes d'endommagement méso et micro complexes**

Mise en forme des semi-produits

- Verrou : caractérisation des microstructures et de leur évolution à toutes les échelles

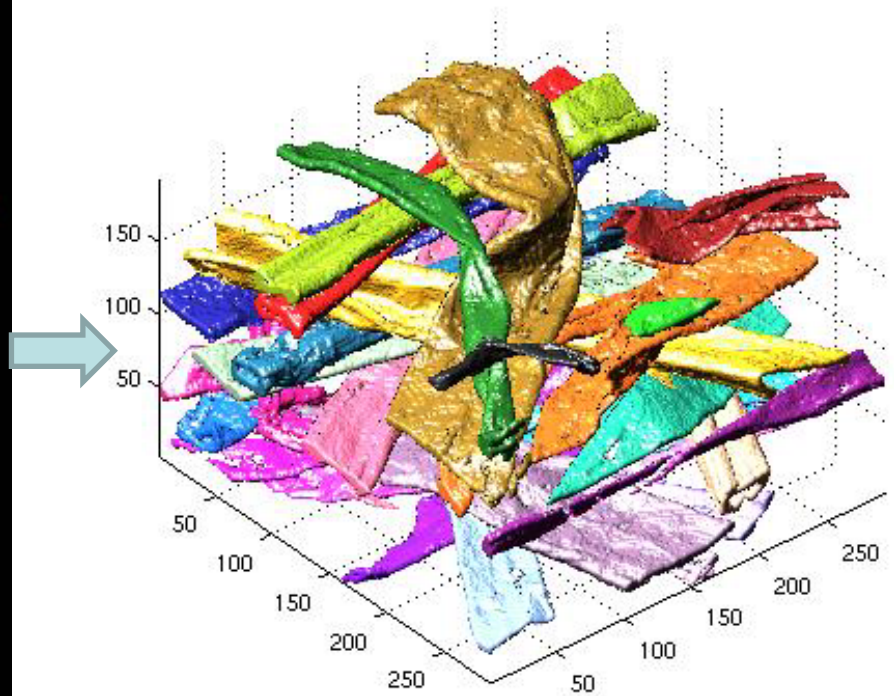
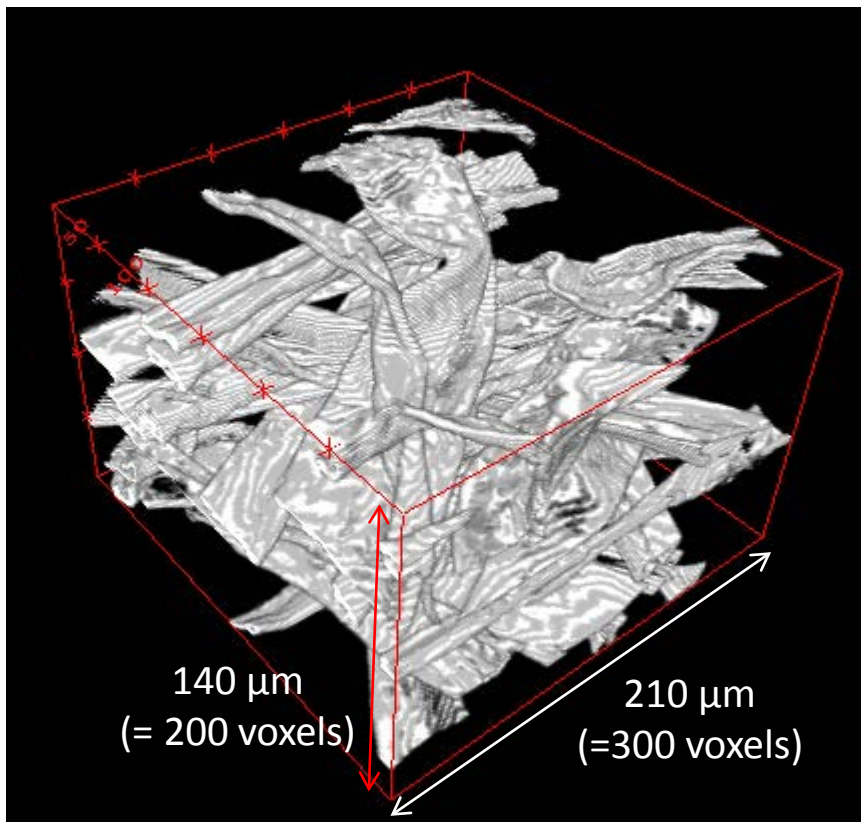
→ Séparation des phases présentant un faible contraste



Mise en forme des semi-produits

- Verrou : caractérisation des microstructures et de leur évolution à toutes les échelles

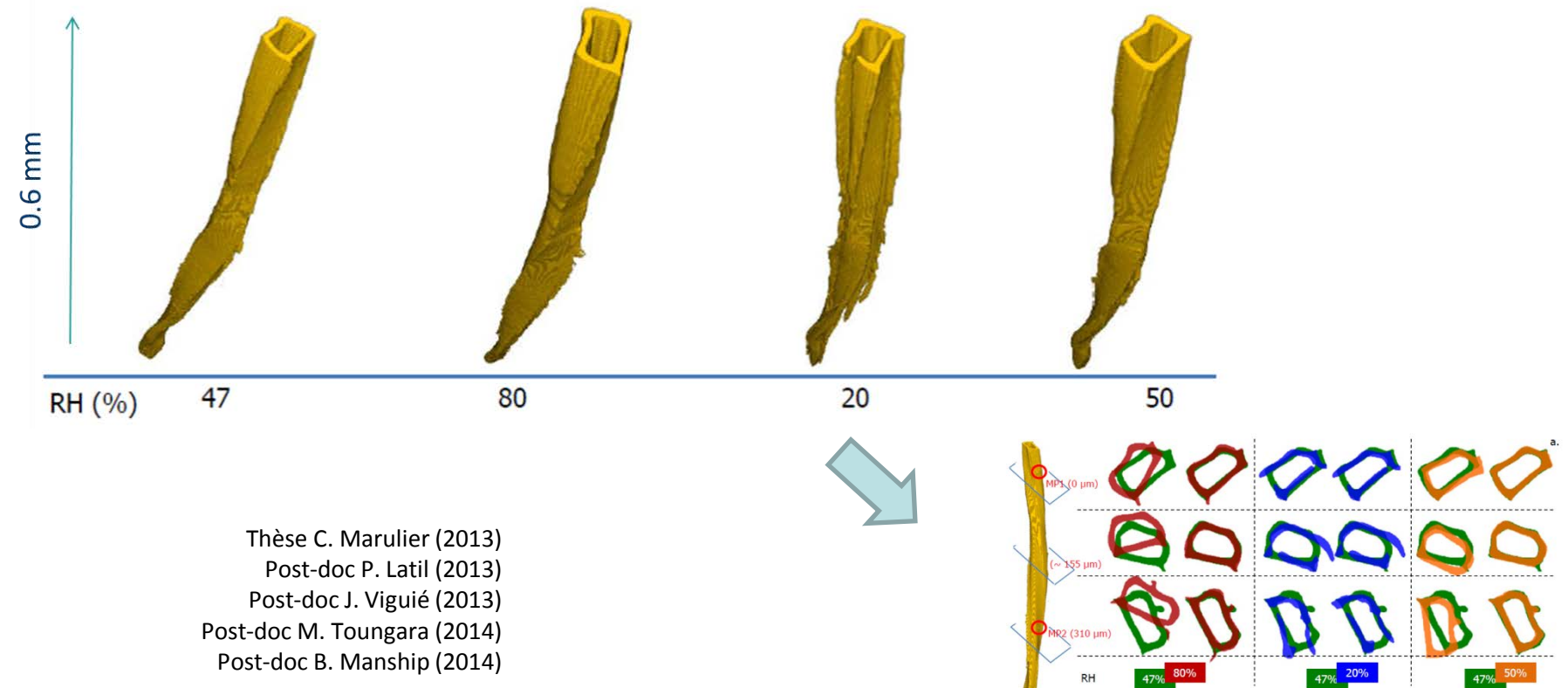
→ Individualisation des fibres dans un réseau fibreux



Mise en forme des semi-produits

➤ Verrou : caractérisation des microstructures et de leur évolution

→ Description et modélisation de la mécanique complexe de déformation des fibres et des réseaux (couplages cinématiques)

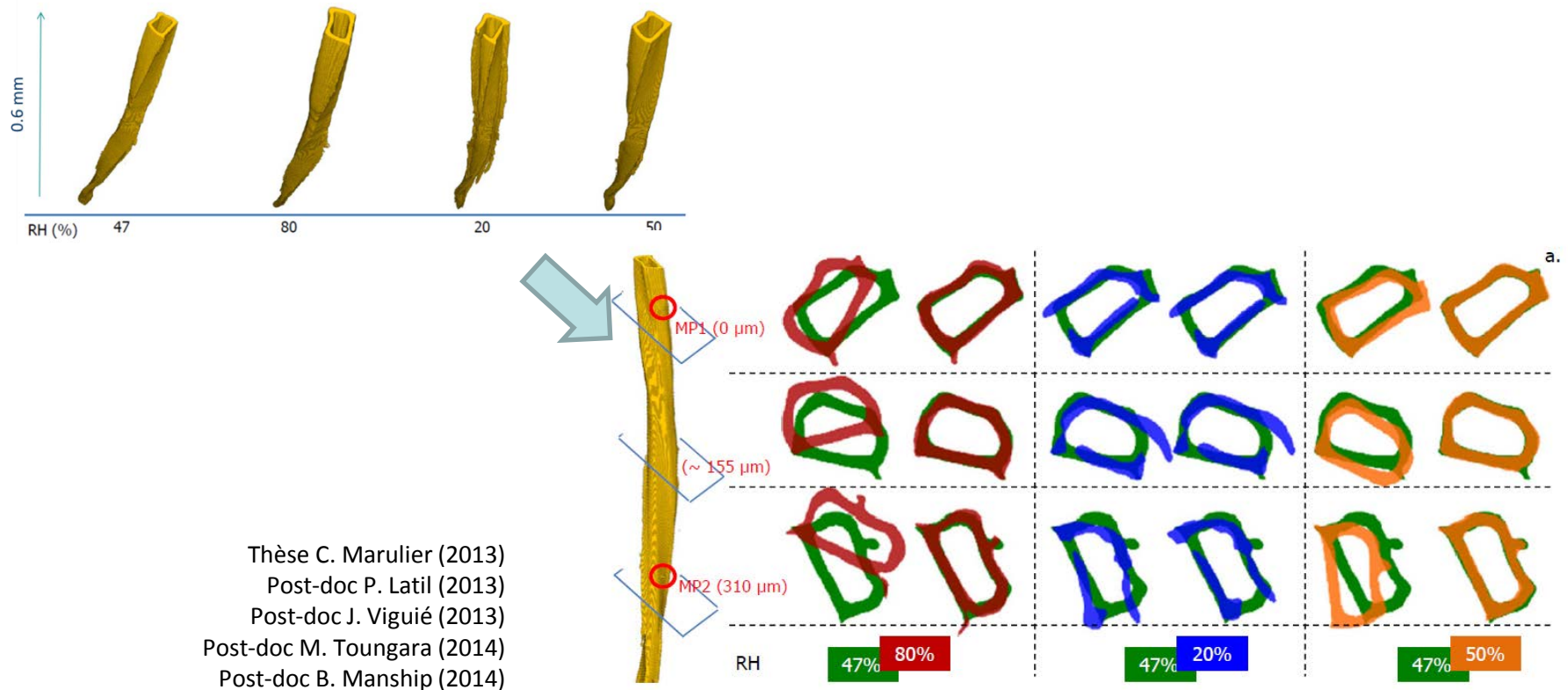


Evolution de l'orientation et de la déformation de sections matérielles des fibres

Mise en forme des semi-produits

➤ Verrou : caractérisation des microstructures et de leur évolution

➔ Description et modélisation de la mécanique complexe de déformation des fibres et des réseaux (couplages cinématiques)

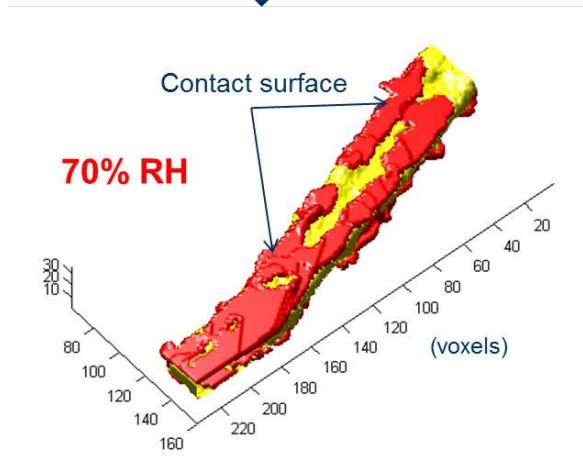
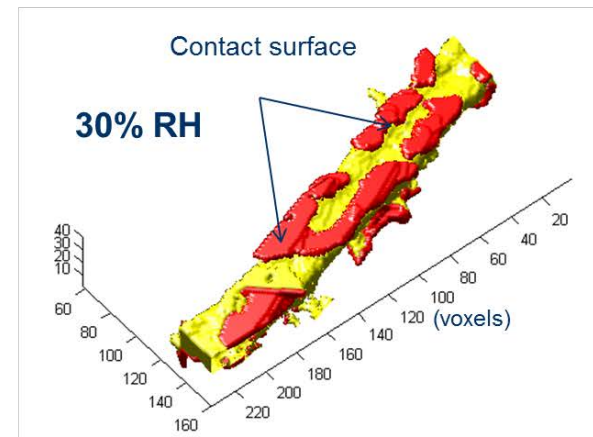
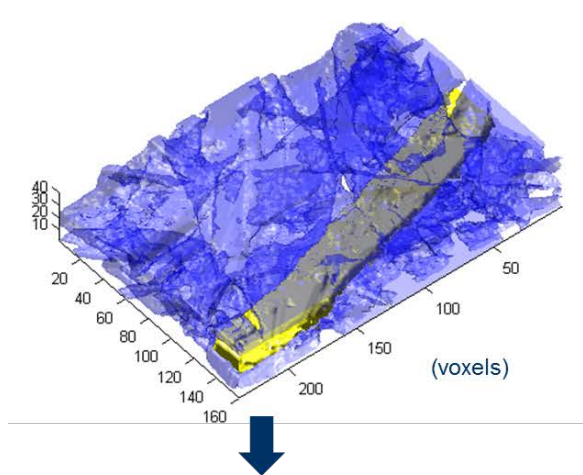


Evolution de l'orientation et de la déformation de sections matérielles des fibres

Mise en forme des semi-produits

- Verrou : caractérisation des microstructures et de leur évolution à toutes les échelles

→ Analyse des phénomènes d'hygroexpansion à l'échelle de la fibre in situ dans un réseau fibreux



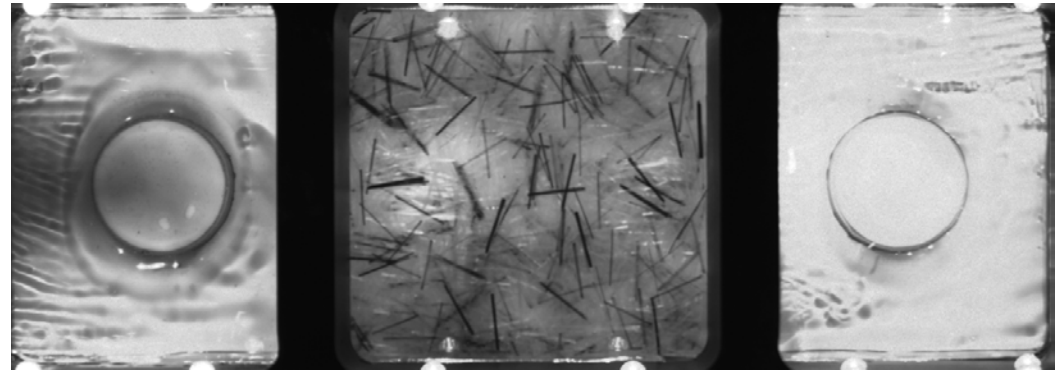
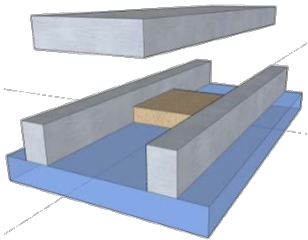
Thèse C. Marulier (2013)
Post-doc J. Viguié (2013)

➤ Vers une analyse automatique des microstructures

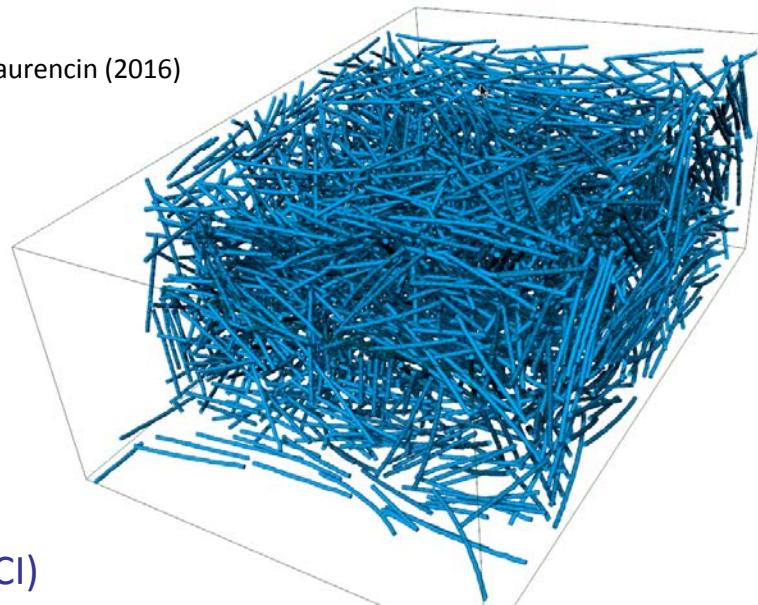
Mise en forme des semi-produits

➤ Verrou : comportement rhéologique lors de la mise en forme

→ Compréhension des évolutions de microstructure



Thèse T. Laurencin (2016)

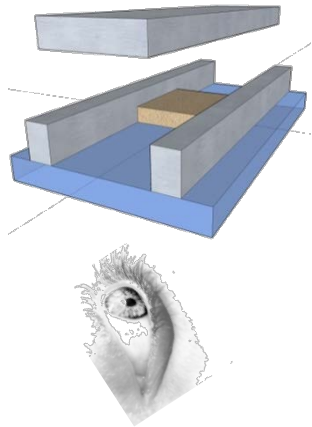


Thèse J.-P. Vassal (2007)
Thèse T.-H. Le (2008)
Thèse O. Guiraud (2011)
Thèse P. Latil (2012)
Thèse T. Laurencin (2016)
Thèse D. Ferré-Sentis (2016)
Thèse D. Kunhappan (2017)

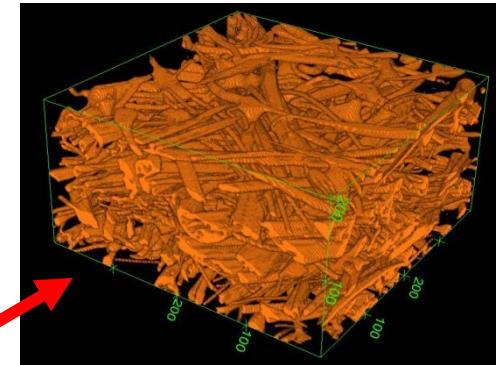
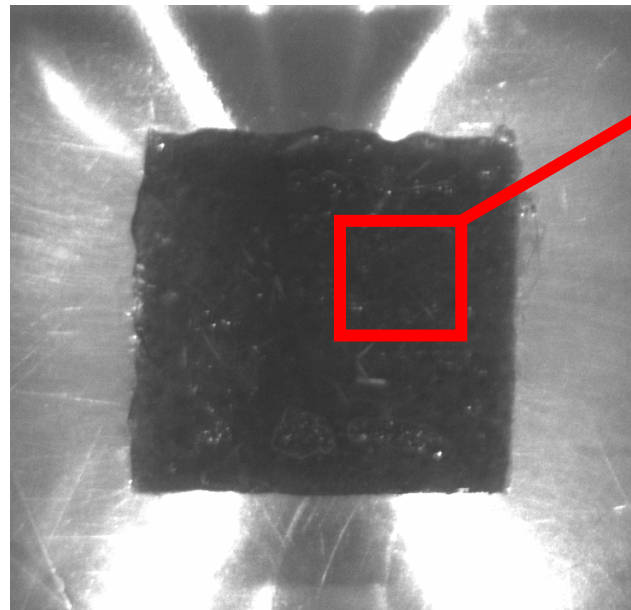
Mise en forme des semi-produits

➤ Verrou : comportement rhéologique lors de la mise en forme

→ Compréhension des évolutions de microstructure

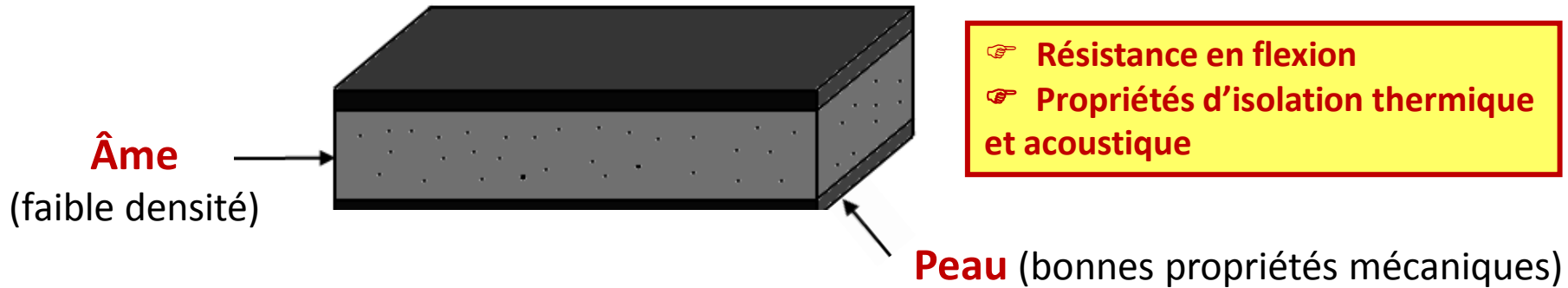


Composite à fibres de lin

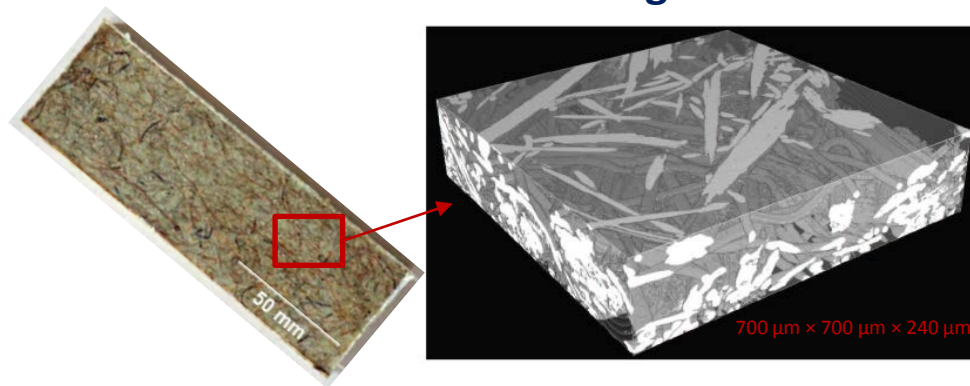


Consolidation du renfort fibreux et phénomène de séparation fibres-matrice

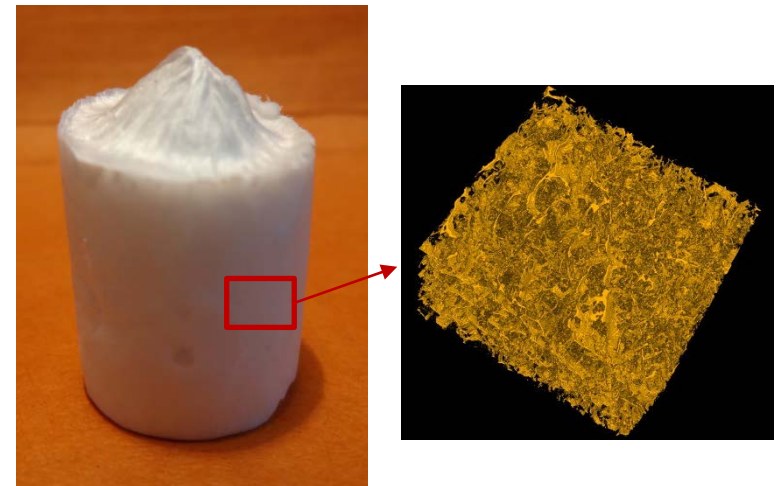
Pour aller vers une structure sandwich biosourcée



Polymère renforcé + mats/tissus/UD de fibres végétales



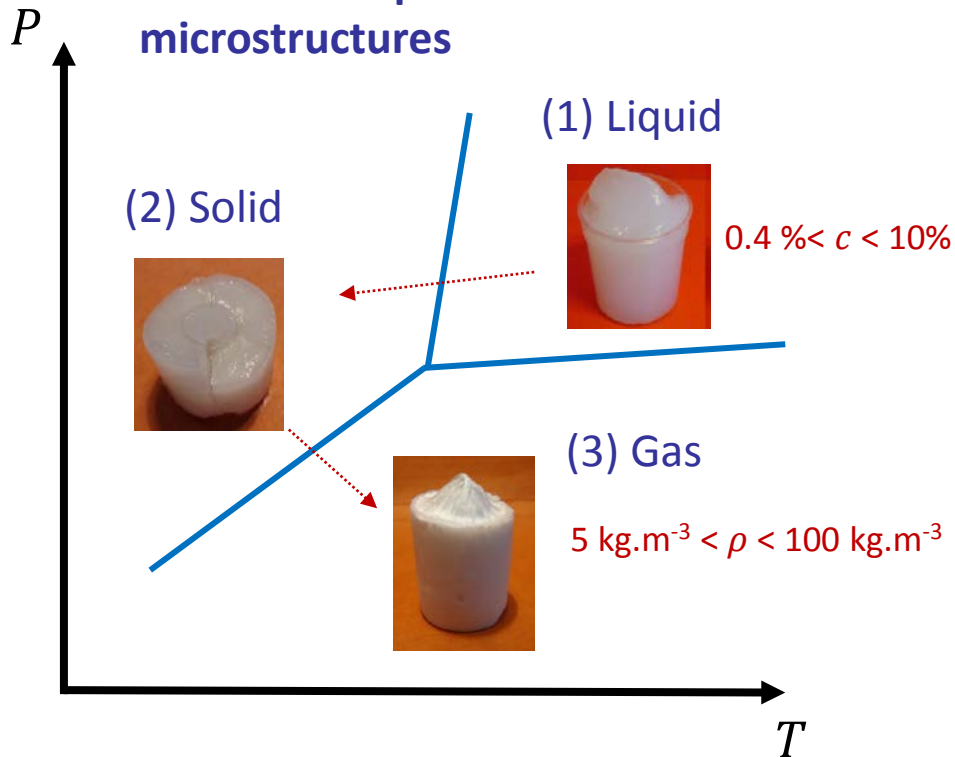
NFC foams



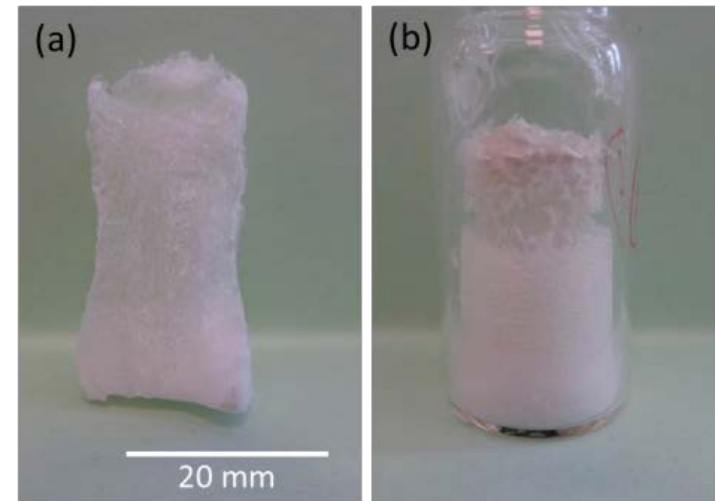
$$1 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3} < \rho < 100 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$$

Elaboration de mousses de NFC par lyophilisation

- Verrou : compréhension de l'influence des conditions d'élaboration sur les microstructures



Thèse F. Martoia (2015)

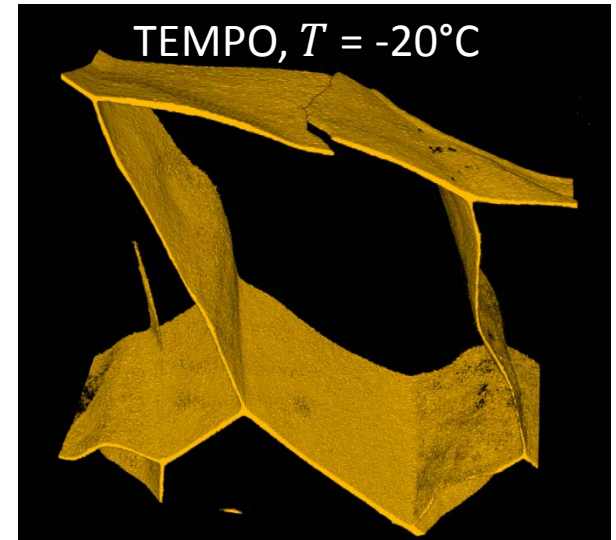
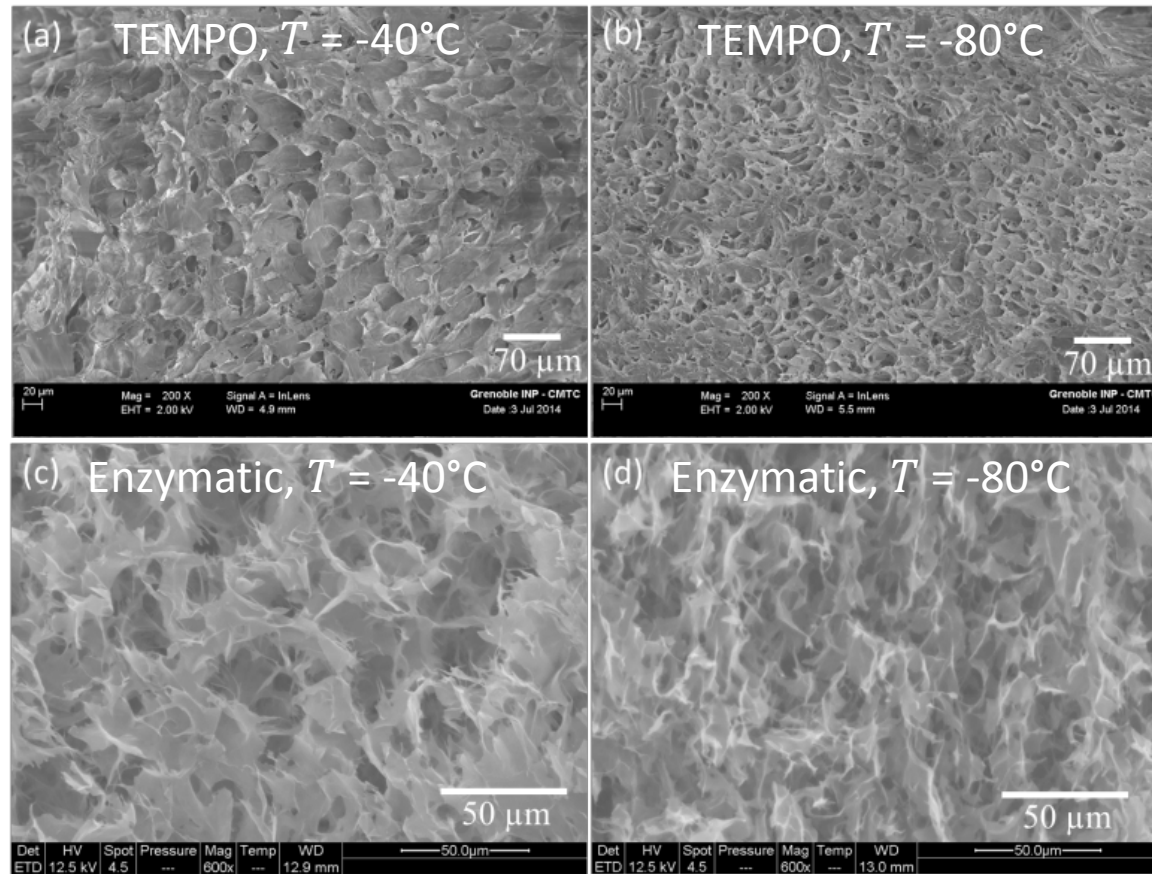


- Optimisation des conditions de solidification des suspensions
- Compréhension de la contribution des interactions colloïdales sur les mécanismes de ségrégation et de redistribution

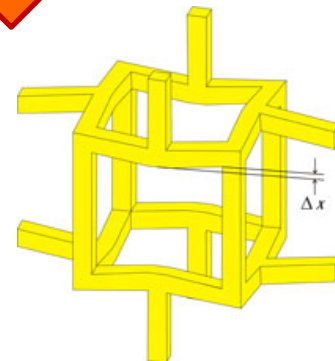
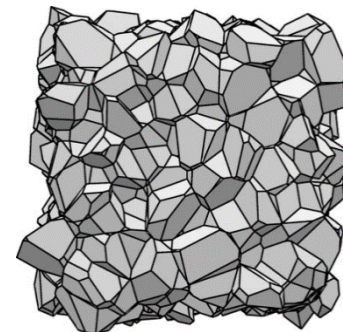
Elaboration de mousses de NFC par lyophilisation

➤ Verrou : caractérisation des microstructures des mousses

Thèse F. Martoia (2015)



???

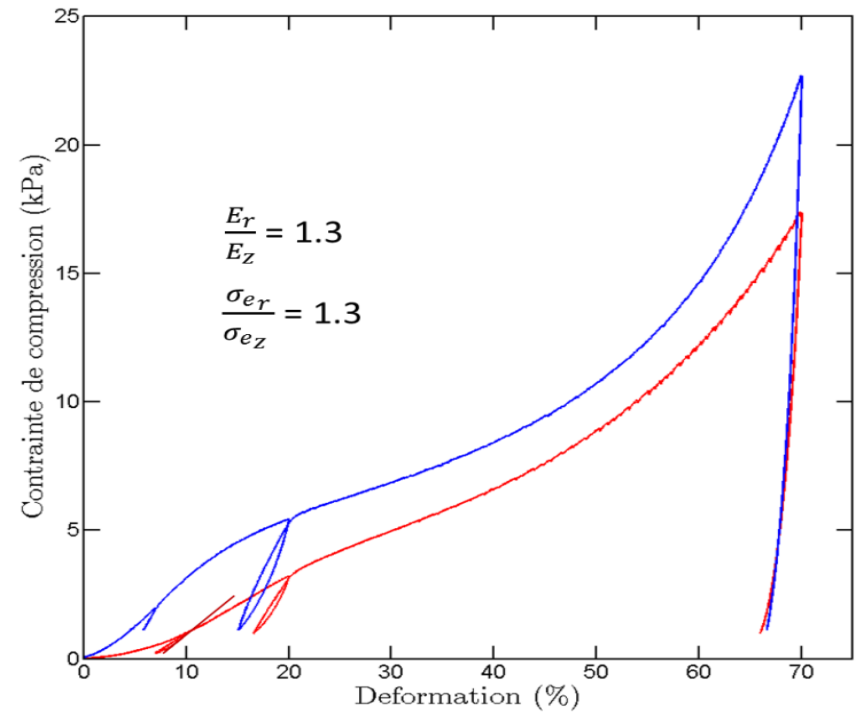
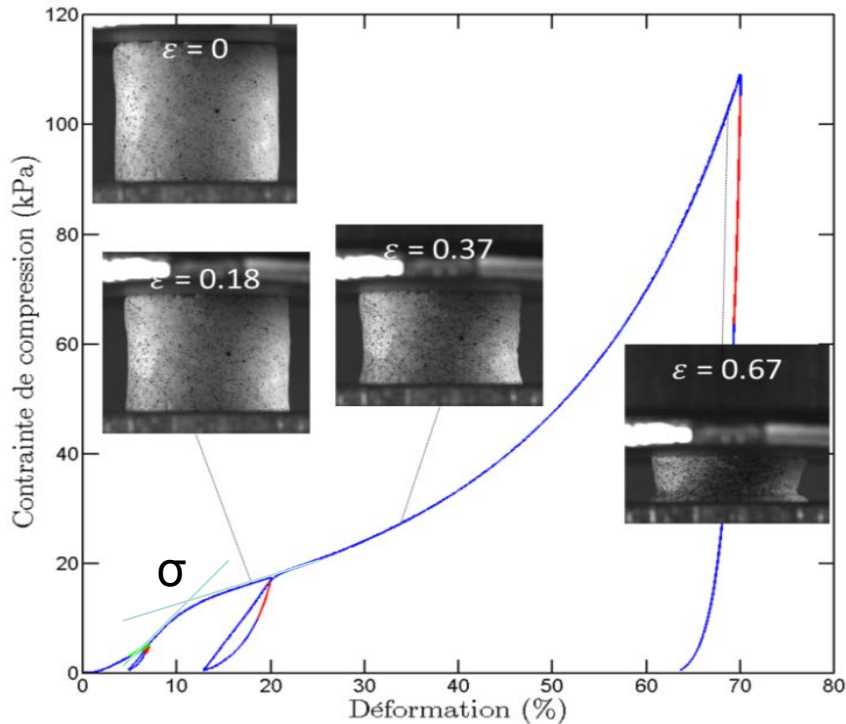


➡ Description 2D (MEB) limitée
➔ Aller vers la 3D

Elaboration de mousses de NFC par lyophilisation

➤ Verrou : modélisation du comportement mécaniques

Thèse F. Martoia (2015)



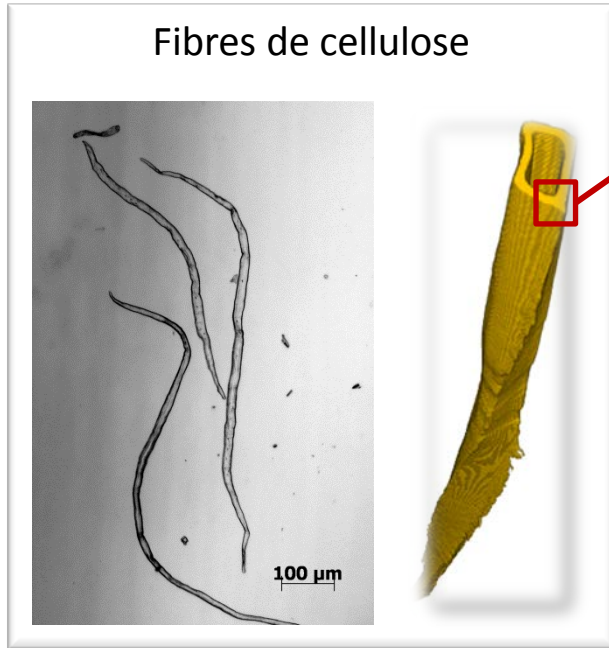
- Comportement élasto-viscoplastique anisotrope
- Plateau d'écroutissement (\neq de la plupart des mousses polymères)
- Effets auxétiques ?

Remerciements

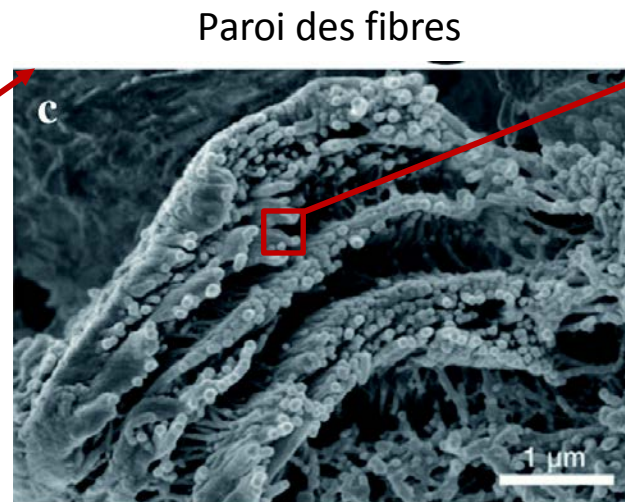


Peau de sandwich renforcée

Les micro et nanofibrilles de cellulose (MFC - NFC)

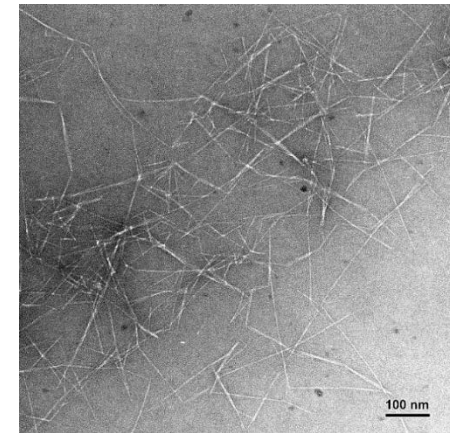


Toungara et al., 2015



Zhu et al., *Energy Environ. Sci.*, 2014

Nanofibrilles de cellulose



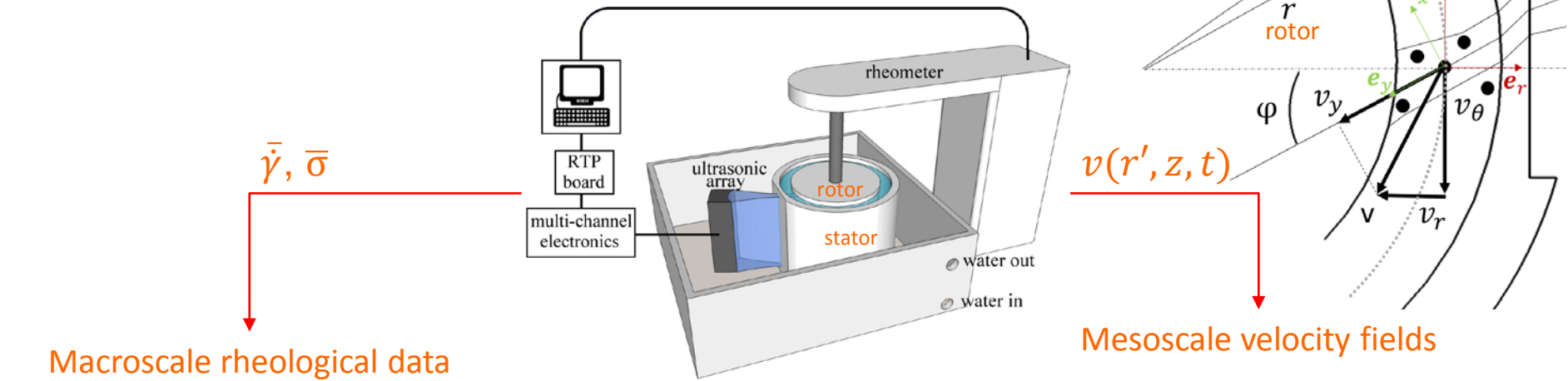
$E \approx 80 \text{ GPa}$
 $\sigma \approx 1 \text{ GPa}$
 $l/d \approx 100 \text{ to } 500$



👉 Les NFC/MFC sont extraites sous forme de suspensions colloïdales aqueuses

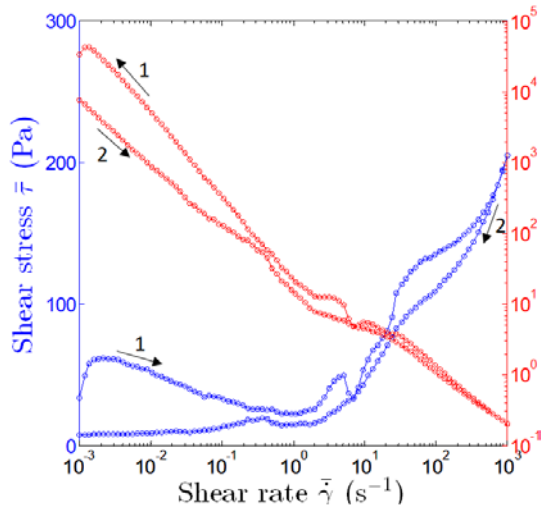
Mesoscale rheometry

Ultrasonic velocimetry (USV) measurements in Couette rheometer



$\bar{\dot{\gamma}}, \bar{\sigma}$

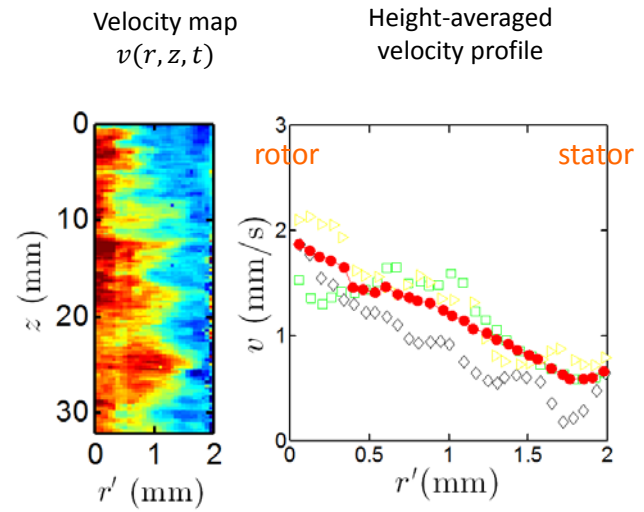
Macroscale rheological data



Rheology →
← Flow kinematics

$$v(r, z, t) \approx v_\theta(r, z, t) + \frac{v_r(r, z, t)}{\tan \phi}$$

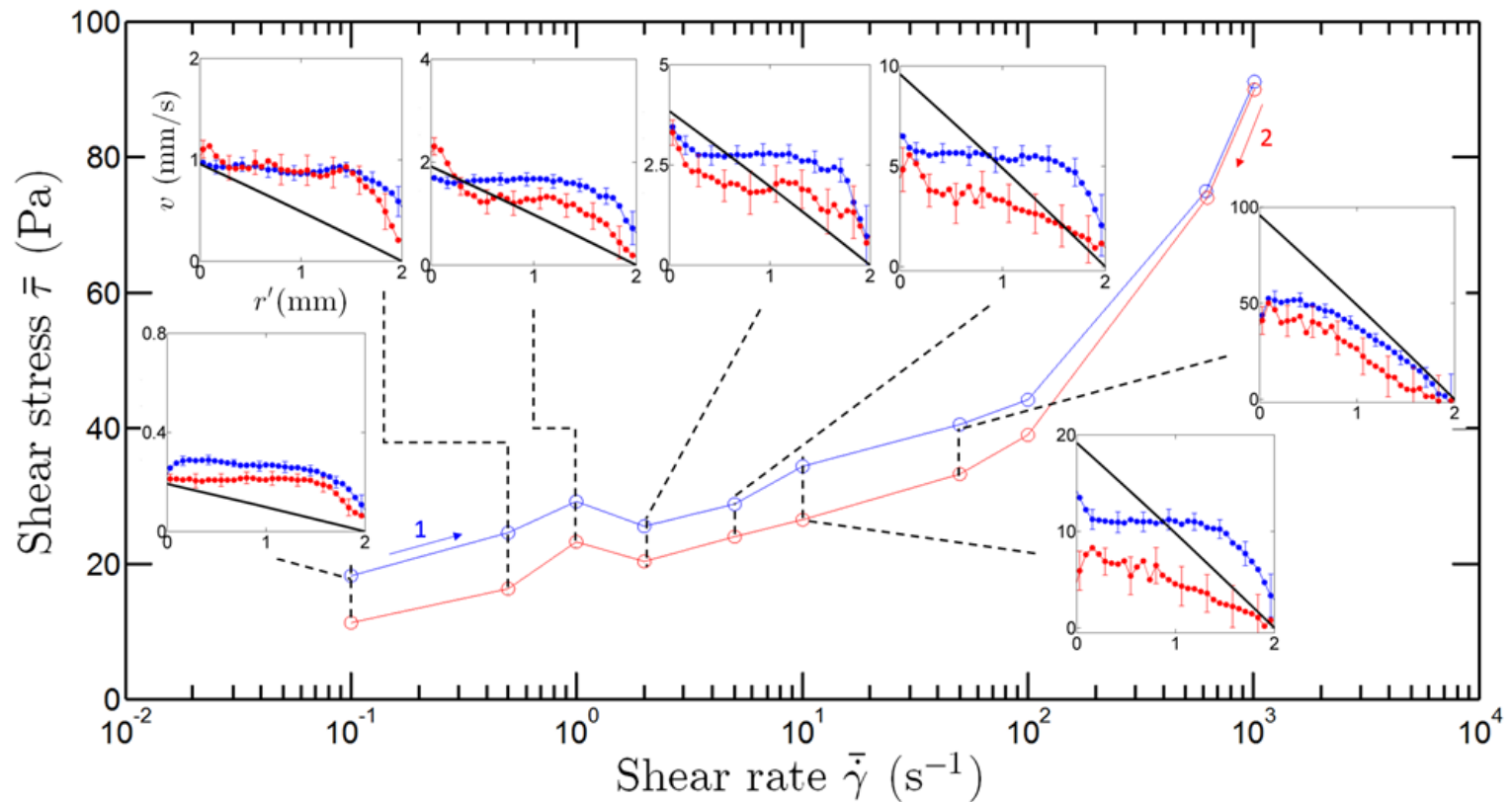
Mesoscale velocity fields



→ Spatial and time resolved characterization of the sheared material simultaneously to macroscale rheological data

Multi-scale shear rheology

TEMPO NFC suspensions ($f^{el} \gg f^{vdw} + f^H$)



👉 Competition between structuration phenomena (through colloidal interactions) at low shear rates and destructuration phenomena (viscous forces) at high shear rates