

## PRINCIPALES PROBLÉMATIQUES ASSOCIÉES À L'UTILISATION DES FIBRES NATURELLES DANS LES COMPOSITES INDUSTRIELS

par Édouard **Philippe**<sup>1</sup> et Jean **Cantoni**<sup>2</sup>

Sans être exhaustive, le but de la présentation est de mettre en avant les problématiques majeures qui devront être étudiées dans le développement de composites techniques utilisant des fibres naturelles. Cette présentation s'appuie sur le travail qui a été fait au sein de l'association FiMaLin<sup>3</sup> (3) pour le développement d'un lin technique destinée aux composites à forte valeur ajoutée.

Pour expliquer la démarche d'introduction des fibres naturelles dans les matériaux composites les points suivants seront analysés.

- Une réponse à une demande de développement durable
- Comparaison des filières textile vs technique
- Un fort enjeu macro-économique ; cas du lin
- Le challenge des fibres naturelles
- La nécessité d'une approche méthodique
  1. Choix des résines: thermodurcissables ou thermoplastiques
  2. Comportement mécanique
  3. Problématique d'humidité
- Aspect économique
- Conclusion

### Les fibres naturelles apportent une réponse à une demande de développement durable

- Les composites utilisés dans l'industrie font appel :
    - à la fibre de verre pour l'essentiel des applications;
    - à la fibre de carbone pour les applications hautes performances;
    - Ainsi qu'aux fibres d'aramide, de Kevlar...
  - La demande en matériaux composites est en augmentation permanente poussée par l'augmentation de la demande mondiale d'une part et par le besoin d'allègement des produits d'autre part.
  - Parallèlement, il y a un besoin de développement durable qui se traduit par trois axes de développement pour les matériaux :
    - Augmenter la part issue de ressources renouvelables
    - Disposer de matériaux biodégradables
    - Augmenter la part des produits recyclables.
- Les fibres naturelles en répondant aux deux premiers points ouvrent des perspectives vers les éco-composites. L'aptitude au recyclage d'un composite à *base de* fibre naturelle est à étudier.
- Le challenge est de faire du lin la troisième fibre des composites à forte valeur ajoutée à côté du verre et du carbone.

---

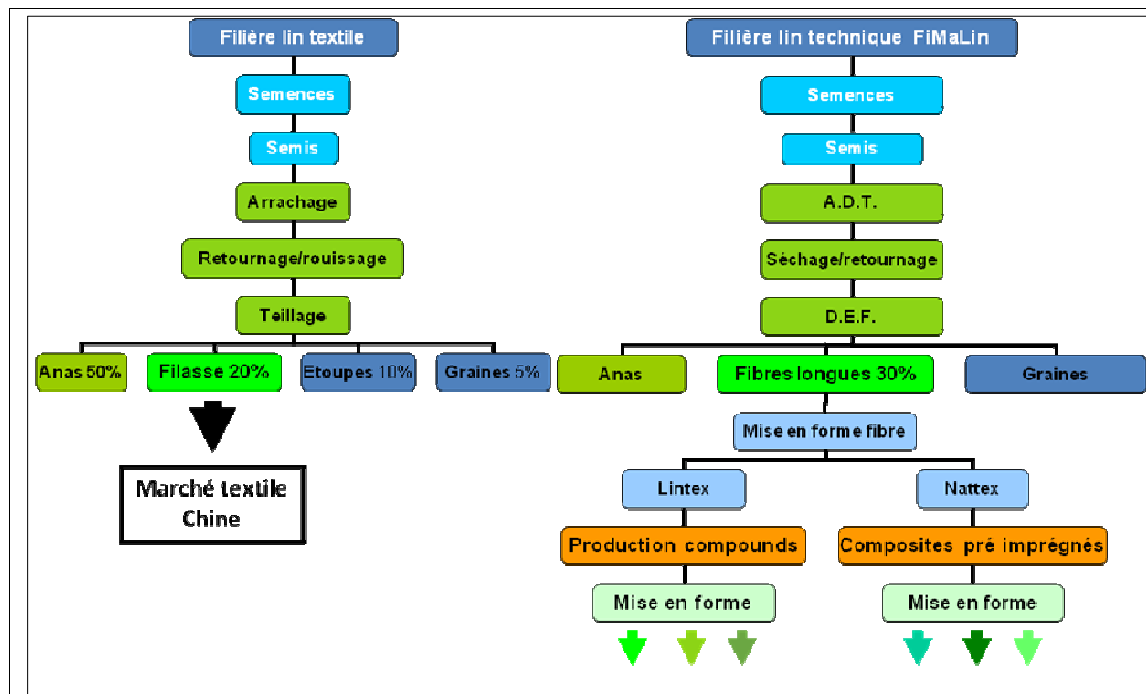
<sup>1</sup> Ingénieur Développement des composites – Dehondt Technologies – chargé de mission auprès de FiMaLin

<sup>2</sup> Ingénieur centralien, consultant spécialiste des matériaux composites.

<sup>3</sup> FiMaLin (pour fibres Matériaux Lin) groupement créé par 4 industriels - Groupe DEHONDT® (76), ARKEMA (27), CLEXTRAL (42), DEDIENNE MULTIPLASTURGY® Group (27)- une coopérative - TERRE DE LIN (14-27-76)- et l'Institut Technique du Lin pour promouvoir l'utilisation de la fibre de lin dans les matériaux composites.

## Comparaison des filières textile vs technique

Les schémas ci-après présentent les étapes de production et transformation du lin selon la destination.



ADT : Arracheuse Double Technique

DEF : Décortiqueuse Enrouleuse Fixe

La pratique culturale du lin technique est différente du fait que les critères de qualité des fibres de lin technique sont différents de ceux du lin textile, notamment en matière de résistance mécanique, finesse, longueur et d'un point de vue économique.

En effet, dans la filière du lin technique, l'innovation apportée est située sur les étapes clés de :

- utilisation de variétés dédiées,
- méthodes de récolte avec ADT qui permet de pré-calibrer en longueur les tiges et de récupérer au champ les graines (même s'il est prévu de les récupérer au moment du défibrage, comme indiqué dans le schéma ci-avant). A noter que la production de graine a lieu aussi au champ dans la filière textile lorsqu'il s'agit de production de semences.
- Méthodes d'extraction des fibres avec des procédés différents, de type DEF, pour augmenter le taux de fibres longues produites et la qualité des fibres,
- mise en forme des fibres: là où, au niveau de la filière du lin textile, à ce jour les étapes de peignage, filature, tissage... sont réalisés en Chine principalement depuis la disparition quasi total de la filature de lin en France, dans le lin technique, il est essentiel de conserver la maîtrise le savoir-faire de la mise en forme des fibres, de types Lintex® (fibres calibrées en longueur, de quelques mm) ou de type Nattex® (fibres continus – roving – sans torsade).

Les deux filières se démarquent, au delà de l'adaptation des techniques culturales et d'extraction de la fibre, par le fait que la voie textile fait appel à des matériels spécifiques jusqu'au stade du tissage, alors que la fibre technique doit s'intégrer dans des circuits où elle se positionne en concurrence avec d'autres produits.

### Les fibres naturelles *constituent* Un fort enjeu macro-économique

Le tableau ci-après montre la répartition de la valeur ajoutée dans la fabrication des composites. La part de la fibre est très minoritaire, encore plus que dans les utilisations textiles, et il apparaît essentiel de conserver dans le pays producteur la plus-value apportée à la fabrication.

Répartition de la valeur ajoutée	Données moyenne	Compounds lin-résine PA11	Composites tissés lin-PA11
Mise en forme	55%	54%	67%
Semi-produits	10%	24%	24%
Distribution	5%	incluse	Incluse
Production de résine		15%	4%
Mise en forme fibre technique	30%	2%	3%
Préparation de la fibre		2%	1%
Production de la fibre		2%	1%

- Le marché des composites est en plein essor. Bien que ne représentant aujourd’hui que 5% en poids des matériaux utilisés dans le monde, avec 4% (6% en France) de croissance par an les composites devraient augmenter leur part rapidement. Ce sont des matériaux à forte valeur : 7,7 €/kg (8,4€/kg en Europe) dans un domaine où la France dispose d’acteurs majeurs pour tous les maillons de la chaîne de valeur.

### Le challenge des fibres naturelles

- Les fibres naturelles et le lin en particulier ont déjà été testés en laboratoire et sur quelques cas d’applications.
- Quelques retours d’expériences non satisfaisants montrent la nécessité de maîtriser plusieurs verrous technologiques pour passer à un stade industriel :
  - ✓ *Le premier challenge est la maîtrise des caractéristiques techniques à la production*
    - Modifier les pratiques culturales : choix de la variété, densité de semis, intrants, ...
    - Adapter les procédés d’extraction de fibres
    - Organiser cette nouvelle filière et la normaliser
    - Assurer la traçabilité matière
  - ✓ *Le second challenge est l’adaptation de la fibre à cet usage*
    - Vérifier la compatibilité avec toutes les matrices polymères
    - Contrôler la reprise d’humidité et le vieillissement
    - Améliorer la tenue au feu, connaître la nature des fumées en cas de combustion.

Compte tenu de leur caractéristiques et de la complexité du domaine des composites, les fibres naturelles ne pourront pas se positionner sur tous les domaines

### La nécessité d'une approche méthodique et coordonnée

- Les challenges concernant la culture et la préparation de la fibre sont traités par Jean-Paul Trouvé. Nous nous limiterons ci-après à ceux concernant les étapes ultérieures, et en particulier les problématiques liées :
  - au type de résine retenue ; thermodurcissable ou thermoplastique.
  - au comportement mécanique et thermo-mécanique de la fibre lors du cycle de polymérisation et/ou de consolidation-formage.
  - A l'imprégnation: interface résine-fibre, au besoin d'ensimage (opération de préparation de surface de la fibre).
  - À la tenue au vieillissement en particuliers en condition humide.
  - Feu-fumée
- L'industrie des matériaux composites fait appel à plusieurs choix de technologies de fabrication des pièces, ce qui déterminent un nombre important de mise en forme des fibres en fonction de ces procédés. Il existe des procédés continus, de type extrusion, enroulement filamentaire, placement de fibres comme des procédés de moulage au contact ou en moule fermé, infusion ou *Resin Transfert Molding* (RTM). A cela s'ajoute l'existence de deux familles de résines, les thermodurcissables et les thermoplastiques. On est donc devant un foisonnement important de procédés liés aux résines employées qu'il faut maîtriser.

### Choix des résines: thermodurcissables ou thermoplastiques

	Résines thermodurcissables	Résines thermoplastiques
Recyclabilité	Seulement sous forme de déchets, réaction de polymérisation irréversible	Oui, réaction de polymérisation réversible
Biodégradabilité	Pas de produit au stade industriel	Premiers produits tels que le PLA (acide polylactique)
Origine: ressources renouvelables	Pas de produit au stade industriel	Polyamide 11 ou Rilsan® Industrialisé par Arkema depuis 1947
Température de polymérisation	Entre température ambiante et 180°C	Jusqu'à 340°C
Viscosité	En général fluide à température ambiante.	Viscosité variable à température de transformation qui peut poser des problèmes
Utilisation	Minoritaire dans l'injection, technique qui représente les plus gros volumes, elles sont encore majoritairement utilisées avec les tissus et mats.	Dominant le marché de l'injection, elles sont de plus en plus regardées pour les composites tissés.

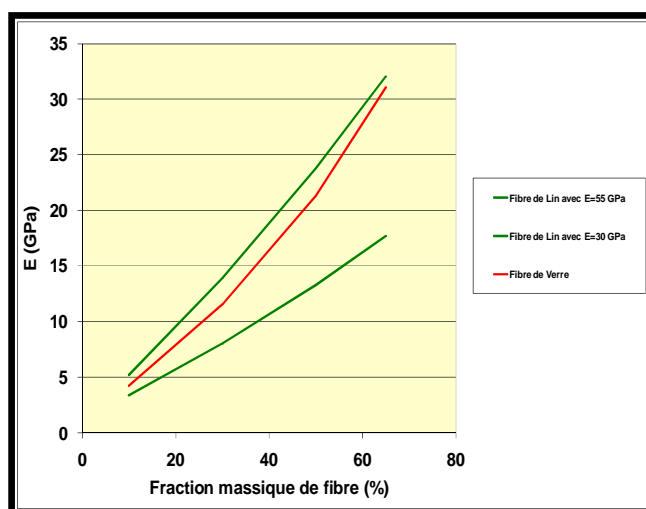
Vu sous l'angle du développement durable, associer fibres naturelles et résines thermoplastiques apparaît comme une priorité puisqu'elles offrent plus de potentiel pour déboucher sur des produits issus à 100% de ressources renouvelables ( cas d'un composite lin-PA11), soit recyclables, soit biodégradables ou associant deux de ces propriétés.

### *Limites techniques*

- Les fibres naturelles ne résistent pas aux hautes températures (200°C pour le lin à titre de repère). On est donc limité avec les résines thermoplastiques ; la température étant globalement corrélée avec la performance, cela exclu une partie des résines techniques et toutes les résines hautes performances (type PPS, PEEK). Le PA11 se situe juste sous la limite haute acceptable pour le lin.
- Le cycle de thermique est plus important que la température elle-même pour la tenue de la résine.
- Certaines techniques de préparation des composites à résines thermoplastiques qui sont largement utilisées font appel à des procédés qui génèrent des efforts mécaniques sur la fibre en raison de leur concept mais aussi de l'impact de la viscosité de la résine. Les fibres naturelles devront pouvoir s'en affranchir.

*Ce bref tour d'horizon confirme la nécessité d'une démarche réfléchie, structurée et de long terme.*

### *Étude du Comportement mécanique*



- Le graphe ci-dessus compare et montre que si l'on peut préserver les caractéristiques de la fibre de lin au travers des différentes opérations de réalisation d'un matériau composite, celle-ci apparaît comme la fibre longue la plus intéressante :
  - Par ses performances proches du verre standard (E).
  - Par sa densité plus faible.
  - Par la possibilité de filage et de tissage.
- Au-delà de ce qui est en cours dans la partie amont (voir présentation de Jean-Paul Trouvé), il est important de comprendre le comportement de la fibre sous les efforts mécaniques et thermo-mécaniques qu'elle va connaître, sans, mais surtout en présence de résine, et plus particulièrement d'une résine thermoplastique. Ce paramètre a un impact sur le domaine d'utilisation et sur le potentiel de recyclabilité
- Dans le cas d'une fibre naturelle, le problème est plus complexe qu'avec du verre (ou du carbone) puisque la fibre elle-même est un matériau composite.
- Lorsque la fibre est utilisée sous forme de fil coupé, l'opération d'association avec la résine la plus utilisée est le compoundage: les deux composants sont mélangés dans une extrudeuse mono ou bi-vis. La fibre va être entraînée par la résine chauffée, malaxée puis le mélange est extrudé au travers d'une filière, refroidi et coupé en granulés.
- Sous les efforts de traction et de cisaillement, les fibres sont « coupées » et dispersés de manière aléatoire dans la matrice. On peut avoir deux types de résultats :

- La longueur des fibres à la sortie dépend de la longueur initiale;
- La longueur de sortie est asymptotique, peu dépendante de la longueur initiale.
- Les compounds sont la matière première pour l'injection. Dans cette opération, les granulés sont poussés dans le moule par une vis installée dans un fourreau chauffant. La fibre va donc subir un nouveau cycle thermo-mécanique lors du formage.

### *Problématique d'imprégnation*

- Dans le cas des composites tissés, il y a une phase d'imprégnation du tissu avant de déclencher la réaction de polymérisation. Il va être important :
  - D'une part de permettre une diffusion homogène de la résine
  - Mais aussi de limiter le temps de diffusion qui se fait le plus souvent en haut du cycle thermique (cas des thermoplastiques en particulier).
- Pour cela, on dispose de trois moyens d'action :
  - Coté tissu, ajuster la densité des tissus comme c'est le cas avec le verre ou le carbone, d'où l'intérêt d'une fibre longue fine et résistante (cas du lin).
  - Coté résine, ajuster les formulations pour avoir des produits peu visqueux en phase vitreuse.
  - Coté procédé d'imprégnation, aller vers ceux qui permettent de pré disperser la résine dans le tissu comme par exemple :
    - tissu à base de fil « comélé » c'est-à-dire fait d'un fil de fibres combiné à un fil de résine ;
    - poudrage des tissus qui permet de « coller » sur les fibres du tissu de petites gouttes de résine.
- Lors du formage par thermo compression du matelas de tissus pré-imprégnés, on recherchera à utiliser des procédés à faible inertie thermique comme les procédés à induction (3iTech de RocTool par exemple) pour limiter la phase haute température au minimum requis.

### *Problématique d'humidité*

- Les fibres naturelles sont hydrophiles. Le risque est donc une reprise d'humidité qui va entraîner une dégradation de la fibre et donc une dégradation de la tenue du matériau dans le temps.
- Dans les applications en milieu très humide (contact permanent avec l'eau), les avancées de sont pas suffisantes à ce jour pour ouvrir ces domaines aux composites à fibre naturelles dont le lin.
- Pour les autres domaines, cette problématique doit être traitée en priorité une fois résolue les problèmes de variabilité des caractéristiques, d'imprégnation ou de compoundage: parmi les options, l'ensimage de produits isolants.

### *Tenue au feu*

Il existe des traitements dits « ininflammabilité » qui retardent la combustion. Elle peut néanmoins se produire au bout d'un certain temps et dans ce cas il faut connaître la nature des fumées au plan des risques pour l'homme ou les animaux.

### **Aspects économiques**

- Tout projet techniquement réalisable doit aussi intégrer les données économiques afin de proposer des nouveaux matériaux valorisables par le marché.
- Les études montrent que le point le plus critique est la phase de démarrage compte tenu de la séquence de culture et du recours probable aux mélanges pour réguler les caractéristiques de la fibre.

Cela pousse à privilégier les applications de niche dans une première étape pour valoriser les propriétés de la fibre.

- Les études de prix font apparaître un écart défavorable par rapport à la fibre de verre qui devra pouvoir être compensé par les retombées en termes de développement durable. C'est pourquoi, il faut très tôt intégrer les ACV (Analyses de cycle de vie) pour viser des niches générant de réels retours sur investissement

### CONCLUSIONS

- Les fibres naturelles permettent d'ouvrir des voies vers les éco-composites pour répondre aux attentes de développement durable.
- Au plan macro-économique, elles permettent de réaliser en France l'intégralité de la chaîne de valeur allant de la culture à la réalisation, voire à l'utilisation des pièces.
- Les fibres naturelles ont déjà fait l'objet d'études qui permettent aujourd'hui de connaître les verrous technologiques à faire sauter pour une utilisation à grande échelle.
- La complexité relative des filières de réalisation des composites techniques renforce le besoin d'une démarche réfléchie, structurée sur le moyen et long terme si l'on ne veut pas se trouver confronter à des désillusions sur leur potentiel.
- Les perspectives qu'offrent les fibres naturelles doivent nous conduire à évaluer de façon méthodique leur potentiel dans les composites techniques et de développer les savoir-faire qui permettront de les utiliser de façon pérenne.
- L'utilisation des fibres naturelles va imposer des adaptations et/ou des modifications coordonnées à tous les niveaux de la chaîne de valeur :
  - culture et extraction
  - procédés de préparation de la fibre (rovings, ensimage) de tissage, d'imprégnation, de mise en forme,
  - choix et formulations, préparation des résines.
- Cela passe par des projets intégrant toutes les composantes du sélectionneur à l'utilisateur.