

## Composite hybride modèle de fibres de carbone recyclées

### *Model hybrid recycled carbon fiber composite*

Florentin Berthet<sup>1</sup>, Sabrina Jlassi<sup>1</sup>, Gérard Bernhart<sup>1</sup>

<sup>1</sup> :

Institut Clément Ader (ICA), Université de Toulouse, CNRS, Mines Albi, UPS, INSA, ISAE-SUPAERO,  
Campus Jarlard, F-81013 Albi CT Cedex 09  
e-mail : fberthet@mines-albi.fr , sjlassi@mines-albi.fr et gerard.bernhart@mines-albi.fr

### Résumé

Le recyclage des composites organiques renforcés de fibres de carbone est une thématique de recherche poursuivie depuis plusieurs années [1,2,3]. En particulier il a été démontré qu'après un traitement physico-chimique dénommé vapo-thermolyse, effectué dans un environnement de vapeur d'eau surchauffée [3], les propriétés des fibres récupérées étaient conservées [1,2]. Les études précédentes ont également montré l'importance des procédés textiles dans la qualité et propriétés des composites de seconde génération, et notamment pour ceux à base de mats [1,2].

À partir de fibres de carbone (T700, T300, IM7) de longueur (50, 80 et 110mm), des mats non tissés ont été fabriqués par cardage. Ces mats non tissés ont été mis en œuvre par thermo-compression avec des films de PA6, pour réaliser des plaques composites PA6-T700-T300-IM7. Les plaques ont été découpées en éprouvettes dans la direction sortie machine (MD) (direction du rouleau) et dans la direction transverse (CD). Ces éprouvettes ont été testées mécaniquement en traction et en flexion.

Les résultats montrent une anisotropie des propriétés en traction (et de flexion). Cette anisotropie a également été observée sur l'architecture fibreuse du mat en mettant en œuvre la technique analyse d'image couplée à une analyse d'orientation par transformée de Fourier. Les résultats ont été comparés à la théorie classique des stratifiés. Cette analyse démontre que ce composite rompt lorsque les plis à +/-45 rompent par fissuration de la matrice en traction (ou peu après).

### Abstract

The recycling of organic composites reinforced with carbon fibers has been a research theme that has been pursued for several years [1,2,3]. In particular, it has been demonstrated that after a physico-chemical treatment called vapo-thermolysis, carried out in an environment of superheated steam [3], the properties of the recovered fibers were preserved [1,2]. Previous studies have also shown the importance of textile processes in the quality and properties of second-generation composites, especially for those based on mats [1,2].

From carbon fibers (T700, T300, IM7) of length (50, 80 and 110mm), nonwoven mats were manufactured by carding. These non-woven mats were implemented by thermo-compression with PA6 films, to make composite plates PA6-T700-T300-IM7. The plates were cut into specimens in the machine output direction (MD) (direction of the roll) and in the transverse direction (CD). These specimens were mechanically tested in tension and bending.

The results show anisotropy of tensile (and flexural) properties. This anisotropy has also been observed on the fibrous architecture of mat by implementing image analysis technique coupled to a Fourier transform orientation analysis. The results were compared to classical laminates theory. This analysis demonstrates that this composite breaks up when (or soon after) the plies at +/- 45 breaks by tensile matrix cracking.

**Mots Clés :** recyclage, fibre de carbone, composite, vapo-thermolyse

**Keywords :** recycling, carbon fiber, Composit, steam thermolysis

### 1. Introduction

Le recyclage des composites organiques renforcés de fibres de carbone est une thématique de recherche poursuivie depuis plusieurs années [1,2,3]. En particulier il a été démontré qu'après un traitement physico-chimique dénommé vapo-thermolyse, effectué dans un environnement de vapeur d'eau surchauffée [3], les propriétés des fibres récupérées étaient conservées [1,2]. Les études

précédentes ont également montré l'importance des procédés textiles dans la qualité et propriétés des composites de seconde génération, et notamment pour ceux à base de mats [1,2].

Les composites utilisant des fibres de carbone recyclées sous forme de mats présentent la particularité de pouvoir comporter des fibres de carbone de différents grade et de différentes longueurs. Pour étudier les propriétés mécaniques de composites à base de fibres de carbone recyclées, il est donc intéressant, dans un premier temps, de s'intéresser à des composites hybrides modèles constitués de différentes fibres de carbone, coupées dans différentes longueurs.

## 2. Présentation de la démarche de calcul des propriétés

Le composite sous forme de mat est modélisé par un stratifié quasi isotrope [90/45/0 /135]s.

Le matériau est un PA6/ T300-T700-IM7 à 28% (en volume) de fibre de carbone

Le calcul des propriétés du composite repose sur la théorie classique des stratifiées [4, 5, 6]. Le critère de rupture est un critère en déformation maximum [4]. A la rupture des plis imputable à la matrice, les plis sont remplacés par un pli endommagé aux propriétés  $E^{\perp}$ ,  $\nu^{\perp}$ ,  $G^{\perp}$  réduites à 10% de leur valeur non endommagée. La rupture finale se produit lorsque le pli à +/-45° rompt.

Les propriétés des fibres et de la matrice PA6 sont détaillées dans les tableaux (Tab.1 et Tab.2). Les propriétés du plis sont détaillées dans le tableau (Tab.3). Elles sont obtenues à partir d'un modèle micromécanique (logiciel ELAMX), pour un taux volumique de fibre de 28 % , sauf le terme SC qui est la contrainte rupture interfaciale de cisaillement qui a été obtenue expérimentalement sur des essais de fragmentation sur monofilament.  $V_f : 28\%$ ,  $\text{int st factor} : 0,29$ ,  $L/d > 1000$

Nom	T300	T700	IM7
densité	1.8	1.8	1.8
Long. E (GPa)	230	230	276
Trans E, (GPa)	15	15	15
Long. G (GPa)			
Trans G (GPa)			
Long Nu	0.23	0.23	0.23
Trans Nu			
Résistance MPa	3530	4900	5654
Déformation ultime %	1.5	2.0	1.9

Tab. 1. propriétés des fibres.[8,9,10]

Nom	PA6
densité	1.15
E (GPa)	3.2
G GPa	1.2
Nu	0.3
Résistance MPa	90
Déformation ultime %	4.5

Tab. 2. propriétés du PA6.

Propriétés	28% T300/PA6	28% T700/PA6	28% T300/PA6
$E_{//}$ (MPa)	66704	66704	79584
$E_{\perp}$ (MPa)	4104	4104	4104
$\nu_{//\perp}$ ( )	0.28	0.28	0.28
$G_{//\perp}$ (MPa )	1682.6	1682.6	1682.6
$X_t$ (MPa)	876 MPa	966 MPa	1301 MPa
$X_c$ (MPa)	1000 MPa	1000 MPa	1000 MPa
$Y_t$ (MPa)	16.4 MPa	16.4 MPa	16.4 MPa
$Y_c$ (MPa)	16.4 MPa	16.4 MPa	16.4 MPa
SC (MPa)	26 Mpa	26 Mpa	26 Mpa

Tab. 3. propriétés des composites PA6/FC.

Les propriétés du déformations à rupture sont détaillées dans le tableau (Tab.4). Ces données proviennent pour la traction de [7,8,9] déformation à rupture au niveau du pli, et de calculs réalisés précédemment.

	T300	T700	IM7
$\epsilon_{L_U}$ ( $\mu\text{def}$ )	12600	14000	16000
$\epsilon_{T_U}$ ( $\mu\text{def}$ )	4000	4000	4000
$\epsilon_{LT_U}$ ( $\mu\text{def}$ ) <b>26 MPa</b>	14400	14400	14400

Tab. 4. Déformations à rupture des PA6/FC.

Le tableau (Tab.5) donne les proportions des différentes orientations des fibres.

Orientation	proportion
<b>0°</b>	25%
<b>+45</b>	25%
<b>135</b>	25%
<b>90</b>	25%

Tab. 5. Proportion des orientations.

Type de fibre	proportion
<b>T300°</b>	2/3 (env.66.66%)
<b>T700</b>	1/6 (env. 16.66%)
<b>IM7</b>	1/6 (env 16.66%)

Tab. 6. Proportion des différentes fibres de carbone.

### 3. Expérimentation

À partir de fibres de carbone (T700, T300, IM7) de longueur (50, 80 et 110mm), des mats non tissés ont été fabriqués par cardage. Les propriétés des fibres et les proportions du mélange initial sont données dans le tableau (Tab. 6). Ces mats non tissés ont été mis en œuvre par thermo-compression avec des films de PA6, pour réaliser des plaques composites Hybrides PA6-T700-T300-IM7. Les plaques ont été découpées en éprouvettes dans la direction sortie machine (MD) (direction du rouleau) et dans la direction transverse (CD). Ces éprouvettes ont été testées mécaniquement en traction et en flexion.

#### Fabrication des plaques composites

Les composites sont mis en œuvre par compression sur le pilote EDYCO à partir de mats et de films de PA6. Les fibres dispersées aléatoirement en mat fibres coupées sont prises en sandwich entre des films de PA6. Des éprouvettes de 125X12.5X2 mm (facteur 0.5 des éprouvettes de type 3 de la norme ISO 527-4) sont découpées.

#### 4. Résultats et discussions

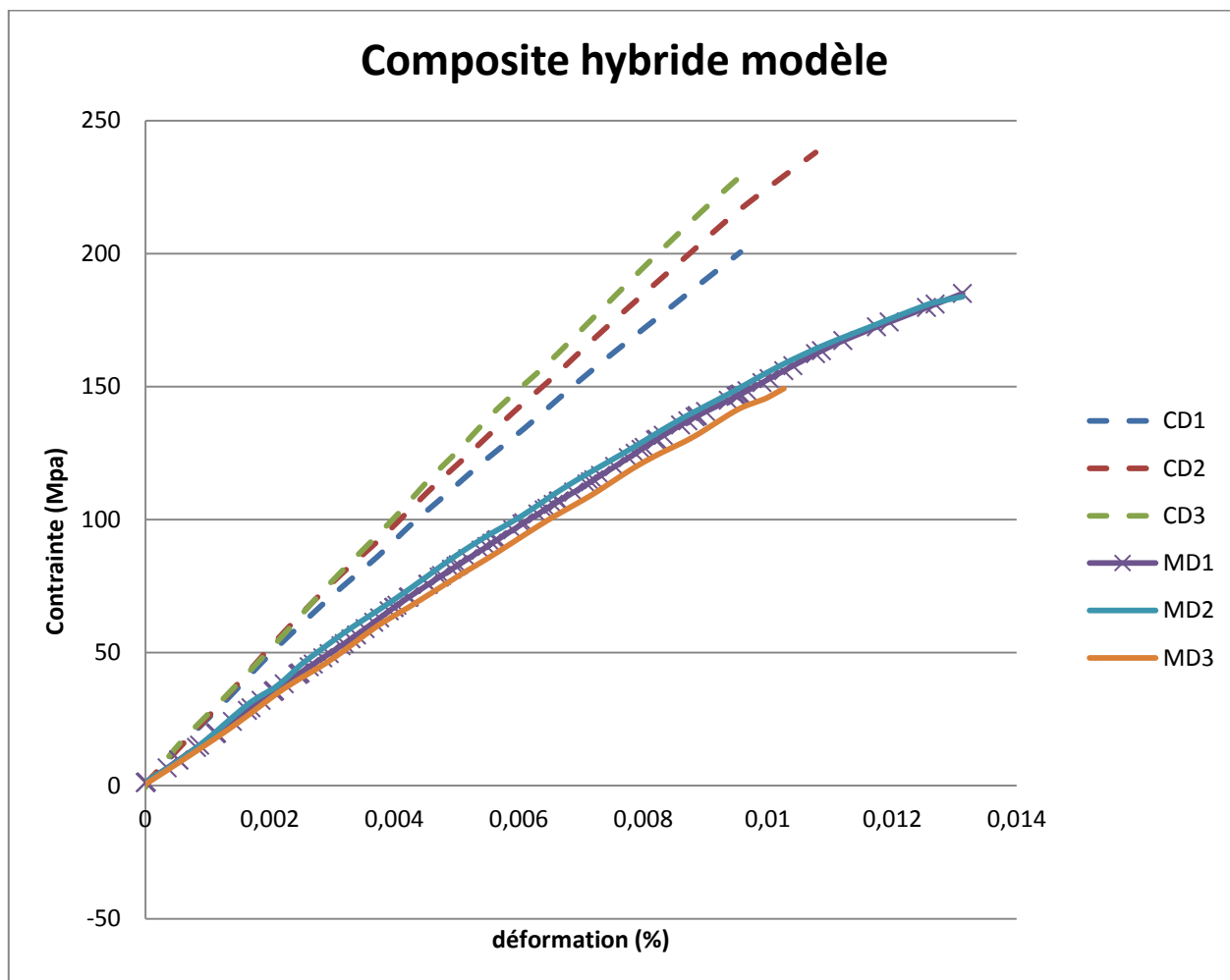


Fig. 1. Résultats expérimentaux en traction sur composite hybride modèle de composite recyclé.

Les résultats montrent (Fig. 1) une anisotropie des propriétés en traction (et de flexion, non illustrées ici) dans le sens MD et dans le sens CD. Cette anisotropie a également été observée sur l'architecture fibreuse du mat en mettant en œuvre la technique analyse d'image couplée à une analyse d'orientation par transformée de fourrier (Fig. 2).

Un faisceau de courbes correspond au sens MD et un faisceau de courbes correspond au sens CD. Cela s'explique par l'anisotropie (Fig. 2) et le niveau d'homogénéité des mats fabriqués

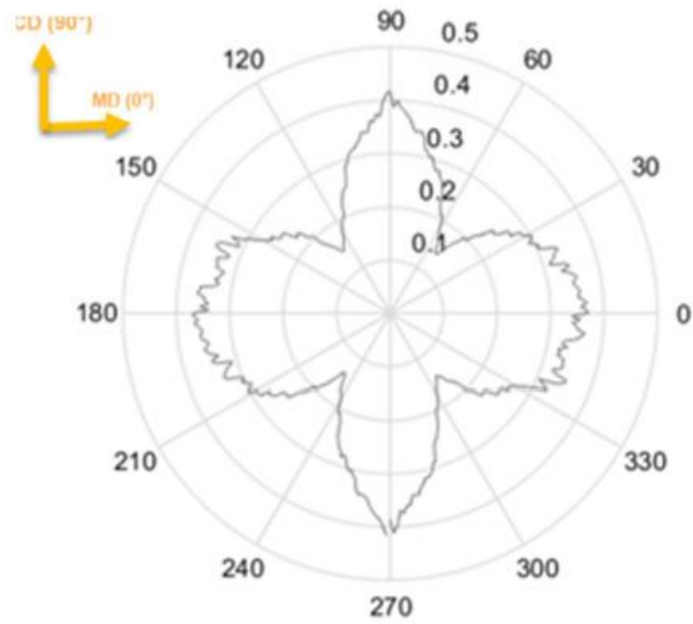


Fig. 2. Distribution radar d'orientation de fibres (MD :0°; CD ::90°).

	CD	MD
Module (GPa)	24.6+/-1.726	16.8+/-1.070
Contrainte (MPa)	236+/-18	176+/*-17
Déformation (%)	1.21+/-0.3	1.34+/-0.3

Tab. 7. Module, résistance et déformations à rupture du PA6/FC hybride modèle en traction.

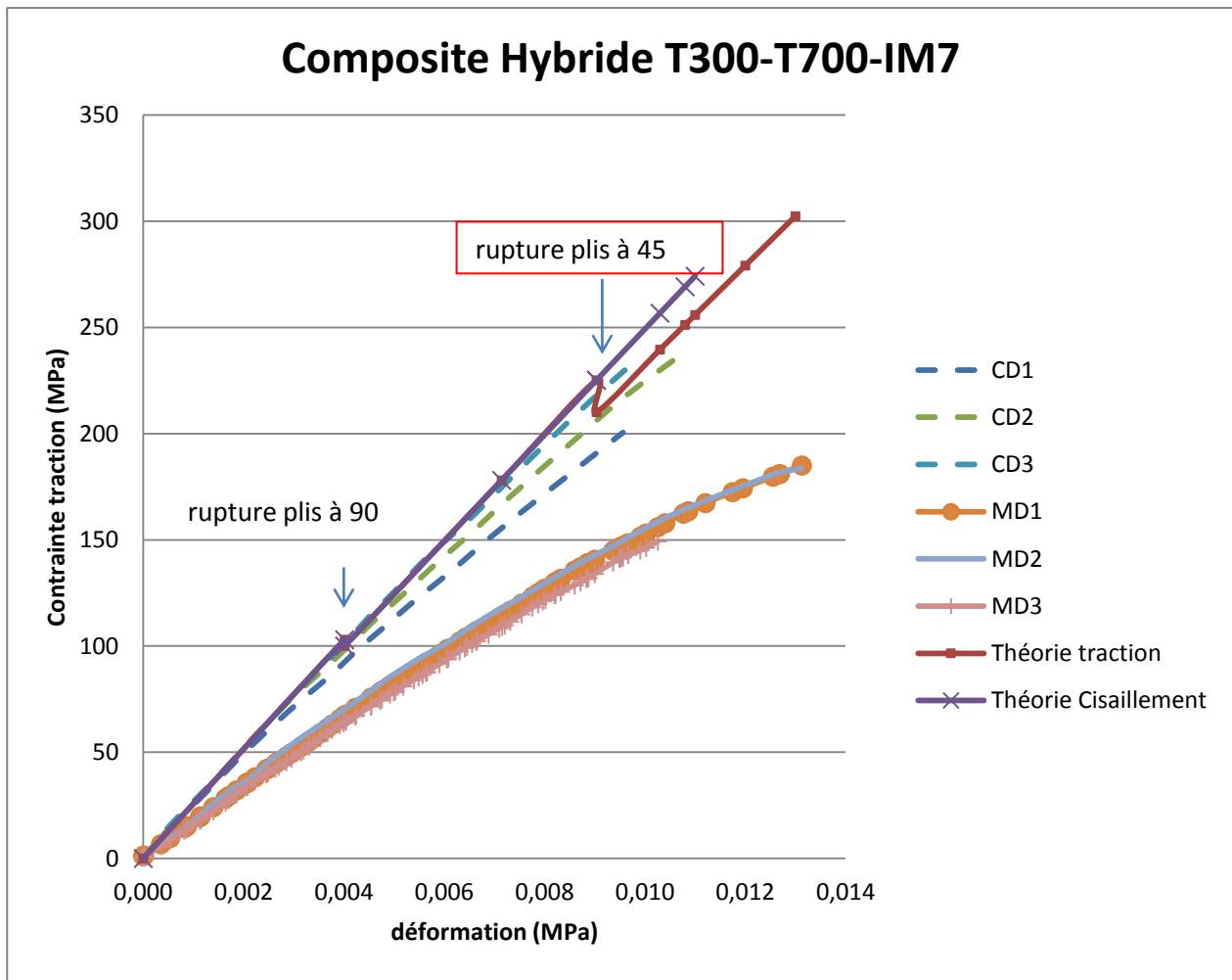


Fig. 3. Contrainte en fonction de la déformation sens Cd et MD pour composite hybride modèle.

Sur la figure (Fig.3), nous avons fait apparaître la rupture du plis à 90° intervenant vers 0.4% . Les plis à +45 et à -45 cassent en premier à 0.9% en fissuration de la matrice en traction , ou à 1.1% par cisaillement de la matrice (si l’interface fibre/matrice est 26Mpa). Puis, à une déformation supérieure (1.3%) le pli à 0° de T300 cède. La courbe (Théorie traction) traduit la rupture par traction de la résine. La courbe (théorie cisaillement) traduit la rupture par cisaillement de la matrice dans les plis à 45°.

Lors de la mise en charge, les ruptures des plis sont synthétisées dans le tableau (Tab.5) et sur la figure (Fig.3)

Module (Gpa)	Cisaillement interfacial 26MPa
25.66	Plis à 90° Cassent à 103MPa (4000 µdef) matrice en traction
	Plis à 90° Cassent à 112MPa (4344 µdef soit 16.4Mpa)(T700, T300 puis IM7)
24.92	Plis à +/-45° Cassent à 225MPa (4344 µdef soit 16.4Mpa)(T300, T700 )
24.92	Pli à +/- 45° Cassent à 225MPa (IM7) matrice en traction
24.92	Plis à +/-45° Cassent à 273.5MPa (14400 µdef cisaillement)(T300, T700 , IM7)
23.26	Pli à 0° T300 Casse à 294MPa

Tab. 5. Synthèse des événements lors de la sollicitation du composite quasi isotrope

Le module prédit pour ce drapage isotrope est un peu élevé (25.66GPa), alors que la valeur expérimentale observée est de 24.6 GPa, cela correspond au meilleur comportement observé sur nos tests.

La valeur prédite pour la fissuration en traction transverse des plis à 45° (225MPa, 0.9%), et la valeur prédite pour la rupture en cisaillement des plis à 45° (273 MPa, 1.1 % de déformation)

Les résultats montrent que l'on ne va pas à la rupture des fibres, mais que la rupture intervient plutôt par rupture de la résine en traction et/ou rupture de la résine en cisaillement. La dispersion constatée expérimentalement laisse à penser que ce sont ces deux modes de rupture qui sont à l'œuvre simultanément, et que l'un ou l'autre l'emporte au cas par cas. Peu après la fissuration correspondant aux plis à +/- 45°, on observe expérimentalement la casse du composite.

La Figure (Fig. 3) montre le comparatif entre les résultats théoriques avec les résultats obtenus expérimentalement. Les résultats expérimentaux sont inférieurs aux résultats théoriques et assez dispersés. Le module attendu est obtenu pour l'échantillon le plus performant, celui-ci casse cependant prématurément par rapport à ce qui était attendu , à une déformation à rupture faible.

La modélisation suppose uniquement quatre directions de plis ce qui explique l'écart observé entre le calcul et les résultats expérimentaux. Cependant le niveau de contrainte à rupture est bien reproduit.

## 5. Conclusion

Des composites hybrides comportant trois types de fibre de carbone (T300, T700 et IM7) dans trois longueurs de fibres ont été cardés puis transformé en composite à matrice PA6. Ces composites ont été sollicités en traction. Les résultats ont été comparés à la théorie classique des stratifiés. Cette analyse permet de suivre la rupture des plis de matériaux différents. Elle démontre que ce composite rompt lorsque (ou peu après) les plis à +/-45 rompent par fissuration de la matrice en traction et/ou fissuration de la matrice en cisaillement. Les propriétés en œuvre étant les propriétés de la matrice, ces essais laissent peu apparaître d'effet hybride sur les fibres de carbone.

Le modèle de Brady et Kardos [4] a été testé sur ce matériaux composites modèle à matrice PA6 et fibre de carbone recyclées. Les résultats sont en concordance avec les résultats obtenus expérimentalement.

Nomenclature

$d$ : diamètre de la fibre

$L$  : longueur de la fibre

$V_f$  : taux volumique de fibre

## Remerciements

Nous tenons à remercier la société Alpha Recyclages Composites (AFRC) ainsi que la DGA (au travers du projet Rapid VAPOCARB) pour leur support financier

## Références

- [1] Boulanghien, Maxime, Mohamed R'Mili, Gérard Bernhart, Florentin Berthet, and Yannick Soudais. "Mechanical Characterization of Carbon Fibres Recycled by Steam Thermolysis: A Statistical Approach." *Advances in Materials Science and Engineering* 2018 (2018).
- [2] Berthet, Florentin, Maxime Boulanghien, Gérard Bernhart, and Yannick Soudais. "Méthodes de détermination de la résistance en cisaillement à l'interface. Application au PA66 10% FC." *Revue des composites et des matériaux avancés* 25, no. 3\_4 (2015): p-295.
- [3] Ye, Sheng Yin, Arezki Bounaceur, Yannick Soudais, and Radu Barna. "Parameter optimization of the steam thermolysis: a process to recover carbon fibers from polymer-matrix composites." *Waste and Biomass Valorization* 4, no. 1 (2013): 73-86.
- [4] D.G. Brady, J.L. Kardos, Chapter 4 Short-Fiber reinforced Thermoplastics, *Thermoplastic Composite Materials*, edited by L.A. Carlsson, Elsevier science publisher B.V., 1991, p103-138
- [5] Jean Marie Berthelot, *Matériaux composites : Comportement mécanique et analyse des structures, 5 ème édition, 2012, Lavoisier, Paris, 637pages*
- [6] Daniel Gay, *Matériaux Composites, 4 ème édition revue et augmentée, Hermès 1997, 672 pages*
- [7] Swolfs, Yentl, Larissa Gorbatiikh, and Ignaas Verpoest. "Fibre hybridisation in polymer composites: a review." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 67 (2014): 181-200.
- [8] T300 rev.6: updated April 3, 2018
- [9] T700G Rev.5: updated april 13, 2018
- [10] IM7 hex tow carbon fiber datasheet, CTA351FB18