

# **Elaboration de bio-composites hybrides à matrice thermoplastique : formulation optimale et modélisation du comportement dynamique en vue d'une application pour pièces de structure dans l'automobile**

## *Elaboration of hybrid bio-composites with thermoplastic matrix: optimal formulation and modeling of the dynamic behavior for an automotive structural application parts*

**Wassim GUERFALA<sup>1,2</sup>, Patrick ROZYCKI<sup>1</sup>, Christophe BINETRUY<sup>1</sup>**

Ecole Centrale de Nantes  
<sup>1</sup>Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique, UMR CNRS 6183  
1 Rue de la Noë, 44300 Nantes  
e-mail : [patrick.rozycki@ec-nantes.fr](mailto:patrick.rozycki@ec-nantes.fr) et [christophe.binetruy@ec-nantes.fr](mailto:christophe.binetruy@ec-nantes.fr)

<sup>2</sup>Département Caisse en Blanc  
Cellule Recherche et Innovation  
Bertrandt  
35-37 Avenue Louis Breguet, 78140 Vélizy-Villacoublay  
e-mail : [wassim.guerfala@ec-nantes.fr](mailto:wassim.guerfala@ec-nantes.fr)

### **Résumé**

L'impact environnemental devient de plus en plus important dans l'industrie automobile, ce qui pousse les constructeurs à réduire les émissions de CO<sub>2</sub> à travers une motorisation propre et à travers l'allègement des structures. Les matériaux composites, associant légèreté et résistance mécanique, présentent une bonne alternative aux aciers standards avec une réduction de masse considérable, soit 40% de la masse moyenne de la caisse en blanc. L'objectif principal de notre étude est l'application des matériaux bio-composites dans la structure automobile.

Pour répondre aux différentes exigences mécaniques, thermiques et économiques, le premier objectif de ce travail est de développer un matériau composite hybride à base de deux fibres naturelles ayant des caractéristiques complémentaires permettant d'optimiser les performances du composite, tout en garantissant une homogénéité de son comportement mécanique. Le second objectif concerne l'élaboration d'un outil numérique qui permettrait un pré-dimensionnement rapide de structures qui prend en compte les particularités de ce type de matériau composite hybride. En effet, les exigences et les demandes au sein de l'industrie automobile évoluent rapidement et d'une manière continue, il est nécessaire de pouvoir produire une réponse rapide et à moindre frais. Les campagnes expérimentales sont souvent longues et coûteuses pour des matériaux sensibles et encore plus quand ces derniers sont influencés par les conditions environnementales.

### **Abstract**

The environmental impact is becoming increasingly important in the automotive industry, which is pushing OEMs to reduce CO<sub>2</sub> emissions through clean engines but also through structural weight reduction. Composite materials, combining lightness and mechanical strength, offer a good alternative to standard steels with a considerable weight reduction, i.e. 40% of the average weight of the body in white. The main objective of this study is the application of bio-composite materials in the automotive structure.

To meet the various mechanical, thermal and economic requirements, the first objective of this study is to develop a hybrid composite material based on two natural fibers with complementary characteristics to optimize its performances while guaranteeing homogeneity of its mechanical behavior. The second objective is the development of a numeric tool that would allow rapid pre-design of structural parts reinforced with this hybrid composite material. Indeed, obligations of the automotive industry are quickly and continuously changing; it is necessary to provide quick and cost-effective

responses (compared to the long and expensive experimental campaigns especially when there is sensitivity to the environmental conditions to consider)

**Mots Clés :** matériaux composites, fibres naturelles, composite hybride, homogénéisation, thermocompression

**Keywords:** composite materials, natural fibers, hybrid composite, homogenization, thermocompression

## 1. Introduction

L'application des matériaux composites reste limitée dans l'industrie automobile en raison des différentes contraintes techniques, économiques et environnementales. En effet, la maîtrise des aspects technologiques de la fabrication (procédés et cadence de production), du comportement de ces matériaux hétérogènes (loi de comportement et outils de simulation) et de leur durée de vie demeure insuffisante pour une industrialisation en grande série. En ce qui concerne l'aspect économique, le prix élevé des fibres à hautes performances telles que les fibres de carbone ainsi que le coût élevé de la fabrication lié au temps de cycle représentent des freins au développement de ces matériaux. Les travaux de recherche menés visent à définir de nouvelles solutions techniques qui peuvent répondre aux différentes exigences industrielles. Pour cela les premiers travaux ont porté sur la sélection de matériaux et d'un procédé compatibles avec les exigences précitées. Ceci nous a conduit à étudier des fibres naturelles et des polymères ayant des caractéristiques adéquates, et ensuite à adopter le procédé de thermocompression qui permet de réduire les temps de cycle.

Cet article présente les résultats de l'étude comparative des fibres naturelles ainsi que le choix de la combinaison hybride du composite objet des travaux menés. Les critères de sélection porteront sur les caractéristiques mécaniques et thermiques de ces matériaux et sur leurs sensibilités aux conditions environnementales (température et hygrométrie). La deuxième partie porte sur l'étude expérimentale du procédé de thermocompression, pour lequel nous avons déterminé les paramètres optimaux de température, temps de maintien et pression. Les choix opérés permettent de préserver les propriétés mécaniques de nos fibres naturelles tout en garantissant une bonne imprégnation. La dernière partie concerne les grandes lignes de la méthodologie d'homogénéisation multi-échelles et les perspectives entrevues en ce qui concerne l'étude de trois niveaux d'hybridation : l'hybridation des couches, l'hybridation du tissu et l'hybridation des fibres. L'objectif de cette étude consiste à déterminer la meilleure distribution qui met en valeur la synergie entre les fibres utilisées suivant les contraintes thermomécaniques appliquées.

## 2. Choix des fibres naturelles

Un matériau composite est constitué par au moins deux phases complémentaires non miscibles qui forment un matériau hétérogène possédant des propriétés mécaniques optimales. Ces deux entités élémentaires sont les fibres et la matrice [1] ; les fibres reprennent les efforts appliqués et la matrice permet de les transmettre. Le choix de ces deux matériaux est primordial pour la définition des caractéristiques mécaniques d'un produit final ; pour cela nous avons effectué une étude comparative des différentes matrices et fibres suivant des critères de choix basés sur les contraintes de fabrication, les conditions d'application, l'impact environnemental et les contraintes économiques.

Il existe deux principales familles de fibres ; les fibres synthétiques et les fibres naturelles [2]. Nous nous sommes intéressés aux fibres naturelles qui présentent des propriétés mécaniques comparables à celles des fibres de verre.

Les fibres naturelles se classent selon leur origine : animale, végétale ou minérale [3]. Les fibres animales sont composées de substances organiques ou protéiniques et elles sont utilisées

essentiellement dans l'industrie textile pour la fabrication des vêtements (ex : laines, soies etc.). Les fibres minérales disposent de bonnes caractéristiques mécaniques et thermiques grâce à leurs compositions chimiques qui sont basées principalement sur le silicium (ex : wollastonite, amiante et basalte). Les fibres végétales présentent une large gamme de variétés qui dépend à la fois de la nature de la plante mais aussi de leurs origines (feuilles, tiges, graines ou fruits). Nous avons réalisé une première sélection de fibres naturelles en se basant sur des études faites sur les matériaux bio composites et sur leurs domaines d'applications [3]-[4]. L'aspect industriel de la production des fibres (suivie de quantité et de la qualité des produits) représente un facteur important dans cette sélection. Nous avons retenu les fibres suivantes : chanvre, sisal, ramie, jute, lin et basalte. Dans un second temps, nous avons défini des fonctions de contraintes qui reflètent les besoins industriels : allègement de structure, performances mécaniques, prix de revient, impact environnemental et durabilité.

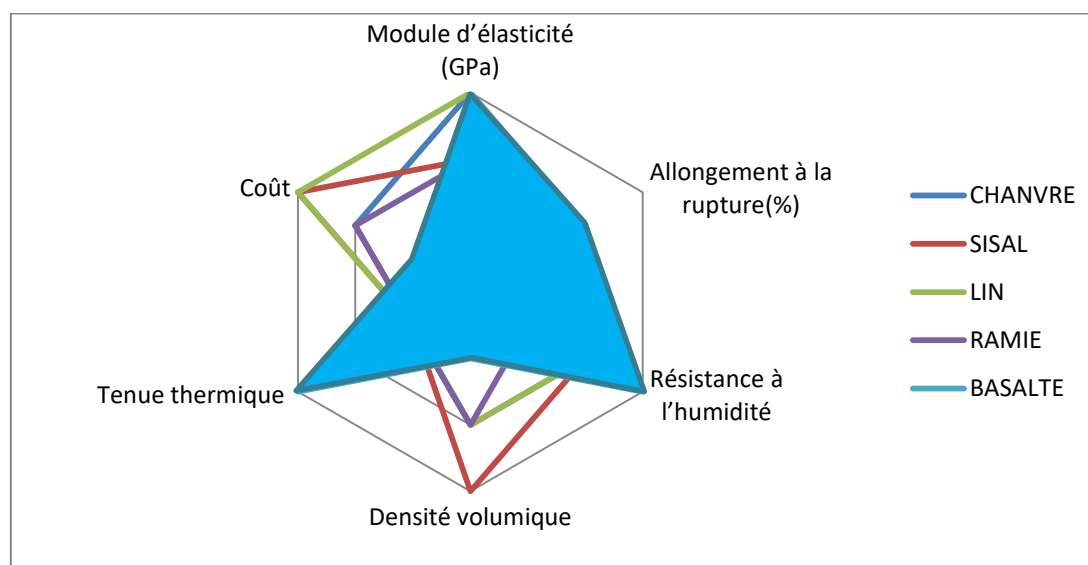


Fig.1. Diagramme comparatif des fibres naturelles

Les résultats de l'étude comparative des différentes fibres naturelles, nous a conduit à la combinaison de la fibre de lin avec la fibre de basalte au regard de leur compatibilité et de leurs caractéristiques mécaniques complémentaires (Fig. 1). En effet, la fibre de lin présente une bonne capacité d'amortissement et une faible densité ( $1.4 \text{ g/cm}^3$ ) [3] alors que la fibre de basalte procure une rigidité élevée (module d'Young de  $86 \text{ GPa}$ ) [5], de la résistance à l'humidité (taux d'absorption d'eau de  $0.03\%$ ) [5] et une excellente tenue à la température (température maximale d'application :  $850^\circ\text{C}$ ) [5]. Afin de respecter l'aspect bio-sourcé de notre matériau, nous avons sélectionné le PA11 qui est une matrice thermoplastique entièrement recyclable et qui présente des bonnes caractéristiques mécaniques et thermiques. Elle montre aussi une bonne adhésion aux fibres étudiées.

Les orientations et la disposition des fibres jouent un rôle important dans la détermination des propriétés mécaniques du composite, pour cela nous avons défini trois paramètres de formulation ; les orientations des couches, la nature des fibres et le type de tissage :

- Un unidirectionnel lin,
- Un unidirectionnel basalte,
- Un sergé 2/2 équilibré du matériau hybride.

Les unidirectionnels lin et basalte sont destinés à comprendre le comportement mécanique de ces deux fibres ainsi que leurs interactions avec la matrice PA11. Le tissu Sergé 2/2 équilibré permet l'hybridation des fibres par co-tissage.

### 3. Thermocompression

Le choix du procédé tient compte des spécificités des matériaux sélectionnés et des contraintes de l'application. Il existe une grande diversité de procédés de fabrication des matériaux composites, chaque technologie dépend de plusieurs paramètres. S'agissant des matériaux, il faut tenir compte de la température de fusion et la viscosité de la matrice, la longueur des fibres et leurs résistances thermiques et des contraintes géométriques liées à la complexité des pièces fabriquées. Nous avons choisi la thermocompression en se basant sur trois facteurs primordiaux : la nature de la matrice (PA11 : thermoplastique), la sensibilité de la fibre de lin à la température et le temps de cycle compatible avec une production en moyenne série.

La thermocompression permet la fabrication de préimprégnés et le formage des pièces en matériaux composites grâce à la combinaison de pression et température pour un temps de maintien relativement court (entre 3 et 5 min) [4]. L'application de cette méthode de fabrication reste limitée pour des fibres végétales à cause du risque de dégradation. Pour cela une étude expérimentale des paramètres de température, pression et temps de maintien a été réalisée.

Une phase de pré-séchage des tissus a été réalisée afin, non seulement, de réduire l'impact de l'hygrométrie sur la qualité d'imprégnation des pré-imprégnés, mais aussi d'améliorer les processus de désorption et de vieillissement du matériau composite. La fabrication des plaques composites a été réalisée selon la méthodologie schématisée en (Fig.2) qui utilise une presse à plateaux chauffants.

La température de fusion de la matrice PA11 ( $T_f = +193.9^\circ\text{C}$ ) a été déterminée par mesure DSC. Une première plaque de lin (sergé 2x2) d'épaisseur 2.3 mm a été fabriquée en appliquant pression de 7 bars sur l'ensemble des pré-imprégnés pour une température de plateaux de  $+240^\circ\text{C}$  et pour un temps de maintien de 3 min (Fig. 2). Nous avons opté pour un refroidissement lent (temps de refroidissement de 24 min), car il permet d'avoir une bonne cristallisation de la matrice ce qui améliore les performances mécaniques du composite. Le refroidissement rapide est appliqué à l'échelle industrielle à travers l'utilisation de deux plateaux chaud et froid, il réduit considérablement le temps de cycle (temps de refroidissement de 5 min) mais peut conduire à des propriétés mécaniques du matériau plus faible.

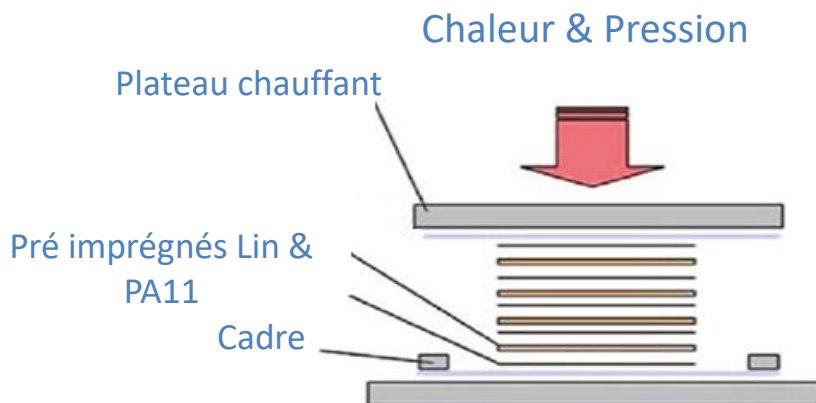


Fig. 2. Thermocompression du composite Lin/PA11

L'étude microscopique des échantillons prélevés de la plaque montre une bonne imprégnation des tissus avec quelques problèmes de cavité (Fig. 3) dus à la désorption de l'humidité présente dans les fibres de lin et la matrice PA11, ce qui peut fragiliser le matériau, créer des microfissures et dégrader les propriétés mécaniques du composite, nous proposerons par la suite un protocole de séchage permettant de remédier à ce problème (température de séchage : 80°C durant 12 Heures). Nous avons constaté aussi la déviation de quelques fibres aux bords de la plaque à cause de la grande pression. Ce premier essai nous a permis de s'assurer de la compatibilité fibre/matrice ainsi que de la qualité d'imprégnation finale.



Fig. 3. Vue microscopique de l'échantillon Lin/PA11

Une seconde plaque a été élaborée avec des paramètres optimisés ( $T = +220\text{ }^{\circ}\text{C}$  et  $P = 5\text{ bar}$ ) par rapport aux premiers essais de fabrication réalisés dans le laboratoire ECN.

#### 4. L'homogénéisation

La deuxième partie des travaux est consacrée à l'étude des différentes méthodes d'homogénéisation. Cette théorie nous permet de prédire le comportement d'un matériau hétérogène à partir des caractéristiques mécaniques de chacune de ses phases. De ce fait, nous pourrions déterminer les propriétés effectives à l'échelle macroscopique du matériau à partir d'un Volume Élémentaire Représentatif (VER). Par ailleurs, il existe deux types d'homogénéisation, (quasi)-analytique et numérique. L'homogénéisation (quasi)-analytique (approche des champs moyens [7]) permet d'avoir des bonnes estimations des propriétés effectives mais reste limitée aux géométries simplifiées. L'homogénéisation numérique relie la réponse contrainte-déformation de l'échelle macroscopique à l'échelle microscopique, elle repose sur l'équivalence de l'énergie de déformation entre le cas microstructural réel et le cas homogène moyen [7].

La détermination des caractéristiques élastiques du composite hybride tissé nécessite l'utilisation d'une méthode d'homogénéisation numérique multi-échelles qui se décompose en deux phases. La première phase concerne l'homogénéisation des constituants (fibre et matrice) à l'échelle microscopique pour prédire le comportement du toron (souvent assimilé à un composite unidirectionnel) et la deuxième phase représente l'homogénéisation à l'échelle macroscopique (toron et matrice) qui permet d'avoir le comportement du composite étudié. Il existe plusieurs classes de conditions aux limites [6] : KUBC, SUBC et PBC. La KUBC (Kinematic Boundary Condition) est déterminée par l'application d'une déformation uniforme sur le VER, la SUBC (Static Uniform Boundary Conditions) utilise des conditions de contraintes uniformes imposées au VER et la PBC (Periodic Boundary Condition) est basée sur des conditions aux limites périodiques sur les faces du VER. Le choix des conditions aux limites dépend du comportement du matériau (élastique, visco-élastique...) et de la taille du VER. Le type du VER impacte fortement les résultats

de calcul, en effet, il a quatre principaux paramètres qui sont ; la taille du VER ( $d \ll L \ll D$ ), la forme du VER (hexagone, parallélépipède...), la disposition des fibres (une ou plusieurs fibres, répartitions aléatoires ou ordonnées) et l'interface fibre/matrice que nous pouvons modéliser par des éléments cohésifs. Nous pourrions ajouter un cinquième paramètre qui est relié à la nature de nos matériaux : l'hygrométrie et sa répartition au sein du VER qui impacterait le comportement global du composite. Nous allons commencer à étudier un VER 3D pour des matériaux à comportement élastique linéaire via la technique d'homogénéisation périodique, la matrice de rigidité homogénéisée est identifiée par l'application de six cas de chargement (trois tractions et trois cisaillements) en utilisant le lemme de Hill-Mandel [7]. L'objectif de cette étude est la corrélation des résultats de l'outil numérique (développé en interne sous langage python et utilisé au sein du code de calcul Abaqus) avec les résultats expérimentaux issus d'essais mécaniques de caractérisation. Dans un premier temps, nous nous proposons de vérifier l'impact de la variation du VER (taille, forme et répartition des fibres), des conditions limites à appliquer notamment pour le VER du composite et enfin de la répartition d'humidité au sein des torons et du composite.

## 5. Conclusion

L'objectif principal de ces travaux de thèse consiste à mettre en évidence l'intérêt de l'application des matériaux bio-composites dans l'industrie automobile à travers une maîtrise des procédés de fabrication des pièces structurelles (qualité et temps de cycle) et de leur comportement mécanique. L'outil numérique d'homogénéisation permettra de prédire les propriétés effectives de plusieurs matériaux tout en optimisant le choix du VER et les conditions aux limites appliquées. L'hybridation des fibres permet d'augmenter les degrés de liberté de conception pour adapter le comportement du composite au besoin (Fig.5).

Durant la première phase de ces travaux de recherche, nous avons commencé par l'étude des fibres naturelles ainsi que des matrices thermoplastiques afin de déterminer la meilleure combinaison fibres/matrice pour notre matériau composite, ensuite nous avons validé les paramètres de la thermocompression (température, temps de maintien et pression) pour répondre au mieux aux exigences industrielles. La deuxième phase de la thèse sera consacrée d'une part à la réalisation et l'exploitation des essais de caractérisation sur les composites (lin, basalte et hybride) et la matrice (PA11), et d'autre part au développement de l'outil d'homogénéisation numérique qui nous permettra de déterminer les propriétés effectives du matériau et d'identifier ses courbe contrainte/déformation. Les conclusions de ces études nous aideront à définir la distribution qui met en valeur la synergie entre les deux fibres utilisées suivant les contraintes thermomécaniques appliquées.

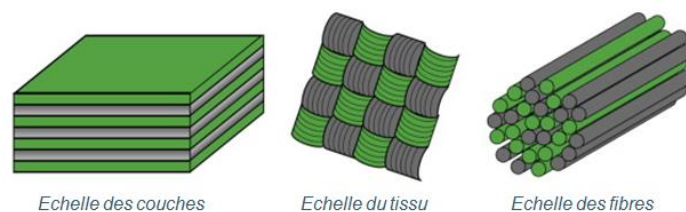


Fig.5. Les différentes échelles d'hybridation des matériaux composites [1]

## Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier l'entreprise Bertrandt et l'ANRT qui financent ces travaux de thèse.

## REFERENCES

- [1] Swolfs, Y., Gorbatikh, L., Verpoest, I. (2014), Fiber hybridisation in polymer composites : A review, Composite Part A: Applied Science and Manufacturing, p. 181-200.
- [2] Fragassa, C., Santulli, C., Pavlović, A., & Šljivić, M. (2015), Improving Performance and applicability of green composite materials by hybridization, Contemporary Materials, p. 35-43.
- [3] Destaing, F. «Contribution à l'étude du comportement mécanique de matériaux composites biosourcés Lin/PA11 élaborés par thermocompression», Ph.D.thesis, Université de CAEN Basse-Normandie, 2012.
- [4] Barbulée, A. « compréhension des effets du défibrage sur la morphologie, les propriétés et le comportement mécanique des faisceaux de fibres de lin. Etude d'un composite dérivé lin-époxyde », Ph.D.thesis, Université de CAEN Basse-Normandie, 2015.
- [5] Escalé, L. « Élaboration d'un matériau composite multifonctionnel : matériau structural intégrant la fonction de blindage pour protéger des menaces de type « petits fragments » », Ph.D.thesis, Université de Toulouse, 2013
- [6] Grégoire ALLAIRE, « Introduction to homogenization theory », in: CEA-EDF-INRIA school on homogenization, Ecole Polytechnique, 2010.
- [7] Gu, H. « Multigrid methods for 3D composite material simulation and crack propagation modeling based on a phase field method », Ph.D.thesis, Université de Lyon, 2016.