



HAL
open science

Identification des bases d'une synergie entre recycleurs et concepteurs : application au cas des composites

Marion Princaud, Stéphane Pompidou, Nicolas Perry, Olivier Mantaux

► To cite this version:

Marion Princaud, Stéphane Pompidou, Nicolas Perry, Olivier Mantaux. Identification des bases d'une synergie entre recycleurs et concepteurs : application au cas des composites. 13ème colloque National AIP PRIMECA, Mar 2012, La Plagne, France. hal-00950092

HAL Id: hal-00950092

<https://hal.science/hal-00950092>

Submitted on 26 Feb 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Science Arts & Métiers (SAM)

is an open access repository that collects the work of Arts et Métiers ParisTech researchers and makes it freely available over the web where possible.

This is an author-deposited version published in: <http://sam.ensam.eu>
Handle ID: <http://hdl.handle.net/10985/7774>

To cite this version :

Marion PRINCAUD, Stephane POMPIDOU, Nicolas PERRY, Olivier MANTAUX - Identification des bases d'une synergie entre recycleurs et concepteurs : application au cas des composites - 2012

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository

Administrator : archiveouverte@ensam.eu

IDENTIFICATION DES BASES D'UNE SYNERGIE ENTRE RECYCLEURS ET CONCEPTEURS : APPLICATION AU CAS DES COMPOSITES

Marion Prinçaud (1), Stéphane Pompidou (1), Nicolas Perry (2) et Olivier Mantaux (1)

(1) Univ. Bordeaux, I2M, UMR 5295, F-33400 Talence, France.

Tél. : +33 (0)5 56 84 79 80. Fax : +33 (0)5 56 84 58 43. Mél : m.princaud@i2m.u-bordeaux1.fr

(2) Arts et Metiers ParisTech, I2M, UMR 5295, F-33400 Talence, France.

Résumé

L'utilisation des matériaux composites à renfort carbone (CRC) et matrice thermdurcissable tend à se développer fortement dans les industries automobile, aéronautique et aérospatiale, malgré le prix élevé des fibres de carbone. Toutefois, dans une approche globale plus respectueuse de l'environnement, la principale limitation à l'utilisation de ces composites reste leur recyclabilité.

Recycler un composite nécessite de disposer simultanément (i) d'un accès au matériau avec la possibilité d'identifier et sélectionner les composites, (ii) d'une solution de démantèlement et (iii) de la technologie de recyclage à proprement parler. Ainsi, la récupération des fibres de carbone permettrait aux concepteurs d'équilibrer coût et efficacité énergétique, tout en proposant les opportunités nouvelles de développer des composites de deuxième génération, destinés en premier lieu à la fabrication de pièces non-structurelles.

Après un état des lieux de leurs principales utilisations et de leurs possibilités de recyclage, nous proposons une approche permettant de mettre en relation les acteurs d'une future filière de recyclage des CRC. Cette proposition s'appuie sur deux exemples de collaborations entre l'Institut de Mécanique et d'Ingénierie - Bordeaux et des industries locales.

Mots clés filière de recyclage, composite C/époxy, solvolysé, cycle de vie, fibre de carbone recyclée

Nomenclature

1G	: première génération	nG	: énième génération
2G	: deuxième génération	r	: rayon (coordonnée cylindrique)
CdC	: cahier des charges	r-	: recyclé
CRC	: composite à renfort carbone	rCRC	: composite à renfort carbone recyclé
CV	: cycle de vie	thermodur	: matrice thermdurcissable
DEEE	: déchets d'équipements électriques et électroniques	VHU	: véhicule hors d'usage
FC	: fibre de carbone	z	: ordonnée, cote (coordonnée cylindrique)
FdV	: fin de vie	θ	: angle (coordonnée cylindrique)
MP	: matière première		
n	: numéro du cycle de vie		

1. Introduction

Dans le contexte actuel de développement durable où les impacts anthropiques sur l'environnement et la finitude des ressources fossiles et minérales doivent être pris en compte, les industriels cherchent à valoriser au mieux leurs filières et leurs produits. Il en est de même pour les matériaux composites qui combinent d'excellentes propriétés et une grande liberté de forme. Les composites à renfort carbone (CRC) [1] et plus particulièrement à matrice thermodurcissable sont couramment utilisés par les industries aérospatiale, aéronautique et automobile, pour des applications à des températures inférieures à 140 °C. Ils le sont également de plus en plus dans le domaine des sports et loisirs.

Les industries de haute technologie sont très strictes sur la qualité des matériaux ; la plupart refusent en effet d'intégrer des matériaux recyclés, même sans dégradation de leurs propriétés mécaniques (p. ex. aluminium recyclé). Les industries s'adressant à un public plus large, telles les sports et loisirs, pourraient au contraire inclure ces matériaux de deuxième génération et en faire un argument de vente supplémentaire.

Par ailleurs, les réglementations sur le taux de recyclabilité des produits se multiplient. Il devient donc nécessaire de prendre en compte la fin de vie (FdV) des composites C/thermodur (i) en évitant leur enfouissement ou leur valorisation énergétique (incinération), et (ii) en explorant les possibilités de récupération des fibres de carbone en lien avec les acteurs issus des sports et loisirs.

Nous nous concentrerons d'abord sur le recyclage des CRC à matrice époxy, avec une attention particulière portée sur les législations en vigueur et à venir, et sur les limites technologiques actuelles. Nous verrons que le recyclage des CRC se limite en fait à celui de la fibre elle-même. Dans la seconde partie, nous étudierons les possibilités de recyclage attendues. Enfin, deux exemples d'intégration de fibres recyclées dans des produits de sport seront présentés.

2. Le recyclage des CRC

2.1. Législation concernant les composites

La fin de vie des matériaux composites est rarement abordée dans les textes de lois. Elle est simplement évoquée dans la directive sur les déchets d'équipements électriques et électroniques (DEEE) [2] et dans les textes concernant la mise en décharge et l'enfouissement des déchets [3].

Les composites sont seulement mentionnés dans la législation REACH (*Registration, evaluation, authorization and restriction of chemicals*) s'ils contiennent des substances toxiques ou nocives, telles que les retardateurs de flamme couramment utilisés en aéronautique [4].

Seule la législation sur les véhicules hors d'usage (VHU) mentionne précisément leur recyclage. En effet selon la directive européenne VHU 2000/53 [5], le taux de récupération et de réutilisation des composants devrait atteindre 95 % en poids moyen par véhicule et par an en 2015, et 85 % en termes de réutilisation ou de recyclage.

2.2. Organiser le recyclage des composites

2.2.1. Contexte

Les directives européennes sur les DEEE et leur fin de vie vont ainsi obliger les industries à trouver de nouvelles méthodes de valorisation, et de nouvelles techniques de recyclage des pièces composites. Dans ce contexte, la création de plateformes de démantèlement va inévitablement augmenter la quantité de composites à recycler. À titre d'exemple dans le sud-ouest, la plateforme

TARMAC (acronyme de *Tarbes advanced recycling & maintenance aircraft Company*) en collaboration avec EADS-Airbus et EADS-SOGERMA, est dédiée aux applications aéronavales civiles. Ils se focalisent principalement sur la réutilisation et la certification de pièces de rechange pour l'entretien d'avions. C'est pourquoi nous nous intéresserons plus particulièrement aux composites à renfort de carbone (p. ex. T800, T300, etc.) et matrice thermodurcissable (p. ex. époxy), très utilisés en aéronautique et en aérospatiale (p. ex. Safran-Snecma Propulsion Solide, EADS Astrium Space Transportation, etc.).

2.2.2. Étapes de recyclage

La phase de fin de vie d'un produit composite va se décomposer en différentes opérations, à commencer par (i) une étape de découpe ou séparation des pièces depuis le système initial, (ii) idéalement une étape d'identification de la nature des renforts présents dans le produit en fin de vie à traiter (basé principalement sur un suivi des données techniques du produit), (iii) si possible la séparation des pièces composites des autres éléments (rivets, inserts, voire protections diverses comme des protections thermiques, etc.), (iv) une mise aux dimensions vis-à-vis de la solution de recyclage envisagée, souvent limitée par la taille du réacteur, four ou broyeur utilisé, (v) la phase de recyclage à proprement parler, et enfin (vi) une étape de travail et de reconditionnement du matériau recyclé.

Ces différentes étapes influent sur la qualité du matériau recyclé, c'est-à-dire ses propriétés physico-chimiques et mécaniques. Nous allons concentrer notre propos sur l'étape de recyclage. Cependant c'est la maîtrise des conséquences positives ou négatives de ces différentes étapes, qui va alimenter les règles à proposer aux concepteurs.

2.2.3. Intérêt

Une étude plus approfondie de la fin de vie des composites est nécessaire. L'enfouissement et la valorisation énergétique (incinération) sont des options de fin de vie considérées comme non durables. Sachant que les CRC sont fabriqués avec des matériaux non-renouvelables et relativement chers (p. ex. prépregs de fibres de carbone : env. 180 €/kg⁻¹), leur donner une nouvelle vie par leur recyclage est une meilleure option économique et écologique. Toutefois, cette étude ne se réduit pas aux CRC en fin de vie à proprement parler, mais concerne aussi les déchets de production (fibres ou prépregs inutilisés, chutes de pièces composites, etc.). Recycler un composite nécessite de disposer simultanément (i) d'un accès au matériau avec la possibilité d'identifier et sélectionner les composites, (ii) d'une solution de démantèlement et (iii) de la technologie de recyclage à proprement parler. Ainsi, la récupération des fibres de carbone permettrait aux concepteurs d'équilibrer efficacité énergétique et coût, tout en proposant de nouvelles opportunités pour développer des composites de deuxième génération, destinés en premier lieu à la fabrication de pièces non-structurelles.

2.2.4. Aperçu rapide des techniques de recyclage envisageables

Il existe plusieurs techniques permettant de recycler les CRC [6] [7], chacune présentant avantages et inconvénients (Tableau 1) [8].

Tout d'abord, le recyclage mécanique consiste à broyer simultanément renfort fibreux et matrice. Cette technique ne fait aucune distinction dans la nature des composites (type et fraction volumique des constituants). Ce recyclage mécanique se réduit donc à une simple valorisation matière. C'est un procédé bon marché, mais très agressif pour les fibres de carbone. Ces produits sont alors utilisés sous forme de broyats dans le bâtiment et le génie civil [9]. Ils sont aussi intégrés dans l'industrie automobile sous forme de charges dans des parties non structurelles. Au mieux, seules des fibres

coupées (courtes) peuvent être récupérées, mais leur principal intérêt (à savoir renforcer la pièce dans des directions privilégiées) est alors perdu [10], [11].

Il apparaît donc évident qu'une meilleure valorisation passe par une séparation des renforts (ici en carbone) de leur matrice. Les matrices thermoplastiques, bien que moins résistantes mécaniquement, offrent des possibilités de mise en œuvre et de séparation en fin de vie qui justifie l'intérêt grandissant des industriels du secteur. Cependant, ces matériaux n'entrent pas encore dans notre cadre d'étude, car leur usage est limité, pour ne pas dire absent des applications aéronautiques ou spatiales qui sont nos principaux fournisseurs de produits en fin de vie. Nous allons donc évoquer uniquement les composites à matrices thermodurcissables. La problématique de séparation fibre/matrice est donc compliquée par la nature de la matrice et son intime imprégnation dans les renforts fibreux.

Un recyclage thermique peut ainsi être réalisé par oxydation en lit fluidisé, pyrolyse ou traitement en bain de sels fondus [8]. Ce sont des techniques classiques qui induisent cependant une déstructuration de l'architecture fibreuses ou une dégradation des propriétés du renfort [8]. À ce jour, la pyrolyse est la technique la plus utilisée.

Enfin, le recyclage chimique (basé sur la solvolysse de la matrice par de l'eau en conditions supercritiques) inclut toutes les méthodes de recyclage à froid (température inférieure à 450 °C et pression de l'ordre de 250 bars, selon le degré de polymérisation de la matrice), mais avec adjonction de produits chimiques [8]. Il permet de récupérer des fibres de carbone assez longues, en préservant leurs propriétés mécaniques. La longueur des fibres de carbone recyclées (rFC) dépend ainsi directement des dimensions de la pièce à recycler (prépregs non utilisés, chutes ou composites FdV) et de celles du réacteur à solvolysse [12]. En outre, leurs propriétés mécaniques atteignent 90 % de celles de fibres neuves. Dans certains cas, la méthode améliore même les propriétés électriques des matériaux [13]. Néanmoins, la viabilité économique de la solution de recyclage chimique, et donc celle des procédés chimiques utilisés, doit encore être démontrée et validée à l'échelle industrielle [9].

Procédé	Avantages	Inconvénients	
Mécanique	<ul style="list-style-type: none"> Récupération des fibres et de la matrice [6] Pas d'utilisation ou de production de matériaux dangereux 	<ul style="list-style-type: none"> Dégradation significative des propriétés mécaniques [6] Déstructuration de l'architecture du renfort, désorientation des fibres [14] Limitation des réutilisations potentielles dans un produit de deuxième génération 	
Thermique	Pyrolyse	<ul style="list-style-type: none"> Bonne conservation des propriétés mécaniques Possibilité de récupérer des composants chimiques de la matrice [15] 	<ul style="list-style-type: none"> Possibles résidus carbonés sur la surface de la fibre [16], [17] Propriétés des fibres recyclées sensibles aux paramètres de traitement [16] Effluents gazeux dangereux pour l'environnement [18]
	Lit fluidisé	<ul style="list-style-type: none"> Haute tolérance à la contamination [6], [19] Pas de résidus carbonés sur la surface de la fibre [20] Procédé bien établi et documenté 	<ul style="list-style-type: none"> Dégradation de la résistance entre 25 et 50 % [21] Dégradation de la longueur de fibre [21], [22] Déstructuration de l'architecture fibreuse (aspect <i>duveteux</i>) [23], [21], [24] Impossibilité de récupérer des constituants à partir de la résine [19], [25]
Chimique	<ul style="list-style-type: none"> Très bonne conservation des propriétés mécaniques et de la longueur de fibre [11], [26], [27] Récupération potentielle des constituants de la résine [28] 	<ul style="list-style-type: none"> Réductions de l'adhérence de certaines résines [26] Faible tolérance aux contaminations [28], [29] Évolutivité réduite de la plupart des méthodes [24], [28] Possible impact environnemental si utilisation de solvants dangereux [7] 	

Tableau 1. Analyse sommaire de différents procédés de recyclage (extrait d'un tableau de Pimenta et al. [8])

Type de rCRC	Procédés possibles		Marchés envisageables pour les rCRC	Exemples de solutions existantes avec des matériaux vierges
	Recyclage	Procédé		
Faible renforcement	<ul style="list-style-type: none"> Pyrolyse Lit Chimique 	<ul style="list-style-type: none"> BMC Moulage en compression de mats non tissés 	<ul style="list-style-type: none"> Pièces semi-structurales d'automobile Équipement de la maison 	<ul style="list-style-type: none"> Panneau de voiture (p. ex. portière) [30] Carburateur [31] Réflecteurs de phares [32] Poignée de réfrigérateur [33]
Renforcement moyen	<ul style="list-style-type: none"> Pyrolyse Lit Chimique 	<ul style="list-style-type: none"> Moulage en compressions de mats non tissés 	<ul style="list-style-type: none"> Structures d'automobile non critiques Intérieur d'avions 	<ul style="list-style-type: none"> Aileron arrière de voiture [34] Haillon arrière [35] Structure de sièges d'avion [21] Compartiment à bagages d'avion [21]
Alignement	<ul style="list-style-type: none"> Pyrolyse Chimique 	<ul style="list-style-type: none"> Moulage en compressions de mats alignés Drapages de prépregs alignés 	<ul style="list-style-type: none"> Structures d'automobile non critiques Intérieur d'avions Structures d'éoliennes non critiques 	<ul style="list-style-type: none"> Partie de toit de voiture [34] Structures d'éoliennes non critiques [36]
Tissage	<ul style="list-style-type: none"> Pyrolyse (prépreg) 	<ul style="list-style-type: none"> Infusion RTM 	<ul style="list-style-type: none"> Structures automobiles Structures d'éoliennes 	<ul style="list-style-type: none"> Panneaux de carrosserie de voiture [34] Structures d'éoliennes non critiques [36]

Tableau 2. Applications structurelles envisageables pour des composites C/thermodur (extrait d'un tableau de Pimenta et al. [8])

Le recyclage d'un composite (par rapport à la simple valorisation matière) se réduit donc à la seule récupération du renfort carboné ; la matrice pourrait toutefois être valorisée en fournissant de la chaleur à un procédé parallèle. En conséquence, le principal critère de choix de la technique de recyclage réside dans la longueur de la fibre de carbone recyclée. On appellera ainsi CRC recyclé (rCRC) un composite mis en œuvre à partir de rFC.

L'utilisation secondaire des fibres sera dédiée à la fabrication de pièces plutôt non-structurelles. En effet, les fibres recyclées et retraitées en semi-produits doivent être pleinement acceptées et donner toute confiance aux utilisateurs, c'est-à-dire les concepteurs généralement peu enclins à intégrer des rCRC lorsque des propriétés mécaniques élevées sont nécessaires (p. ex. dans les industries de pointe). Néanmoins, des marchés sont d'ores et déjà envisagés : l'automobile (en pièces semi-structurelles) (Tableau 2) ou les industries de sport et loisirs [8]. Pour toutes ces raisons, il est nécessaire d'améliorer les procédés de recyclage des fibres de carbone et de créer une demande pour les rCRC, en les proposant sous des formes utiles ou attrayantes pour les utilisateurs finaux, c.-à-d. les concepteurs de deuxième génération. Par exemple, des matériaux bon marché avec de très bonnes propriétés pourraient trouver des applications plus importantes que les composites de première génération. Par ailleurs, ces matériaux issus d'un recyclage sont de fait plus respectueux de l'environnement (au moins du point de vue de la préservation des ressources) et possèdent en outre le potentiel d'un nouveau recyclage.

2.3. Vers le choix d'un recyclage partiel des CRC : conception d'une ligne de recyclage des fibres de carbone

L'Institut de Mécanique et d'Ingénierie - Bordeaux (I2M) a été impliqué dans le projet RECCO (acronyme pour *Recycling carbon fiber reinforced composites*) au sein d'un consortium d'industries aéronautiques et spatiales (EADS-Astrium Space Transportation, Safran-Snecma Propulsion Solide, etc.) afin de proposer des alternatives de fin de vie des structures composites. L'objectif était de valider une solution et un démonstrateur industriels pour le recyclage des composites. Le procédé de solvolys

a été choisi pour séparer (par dissolution) la matrice thermodurcissable des renforts carbone. En conséquence, le cycle de vie des fibres de carbone est prolongé par la régénération des fibres de carbone (FC), ce qui permet de refermer le cycle de vie (Figure 1).

Concentrons-nous sur la vie de la fibre de carbone. Le composite de première génération (1G) est issu de l'association de renforts carbonés vierges (FC 1G) et d'une matrice époxy. Lorsque le composite est en fin de vie, le procédé de solvolyse permet la récupération des fibres. Il est à noter que si la matrice est aujourd'hui perdue, elle pourrait être récupérée pour fournir de la chaleur à une autre solvolyse. Les fibres ainsi récupérées (FC 2G) peuvent alors être utilisées pour créer un composite de deuxième génération (composite 2G).

En supposant une recyclabilité totale et absolue de la fibre, cette représentation peut être généralisée à une fibre de n ème génération (FC n G). Par extension, les composites à fibre de carbone recyclée seront appelés composites n G, même si leur matrice est nécessairement de première génération compte tenu du procédé détaillé à la Figure 1.

En réalité aujourd'hui, les cycles de vie des produits issus de différents secteurs ne sont pas connectés, et la fibre de carbone est au mieux promise à une valorisation énergétique (ligne en pointillés sur la Figure 2). Les industries aéronautique, automobile et sports et loisirs fonctionnent en systèmes fermés (c.-à-d. sans interaction entre eux), ce qui ne signifie pas pour autant que le cycle de vie de leurs produits le soit aussi (sauf peut-être pour l'industrie automobile qui permet la réutilisation de ses composites sous des formes « dégradées »). Nous proposons ici de mettre en relation ces trois industries, en améliorant la fin de vie des CRC. Dès qu'une industrie accepte des rCRC, elle peut être reliée aux autres. Les spécialistes de la fin de vie ont ainsi l'opportunité de prolonger la vie d'un matériau généralement non valorisable en tant que nouvelle source potentielle de matière première, en tant que matière de deuxième génération.

En prenant en compte les limitations précédemment énumérées (longueur de la fibre récupérée, réticences des concepteurs, etc.), le cycle de vie complet des fibres de carbone peut être schématisé comme sur la Figure 2. C'est une représentation en coordonnées cylindriques de l'intégration successive du renfort carboné (recyclé) dans le cycle de vie de produits différents. Seules les principales étapes de chaque cycle sont indiquées :

- intégration des matières premières (renfort carboné en particulier) ;
- conception et production des pièces composites ;
- distribution des produits finis et transport ;
- utilisation et maintenance ;

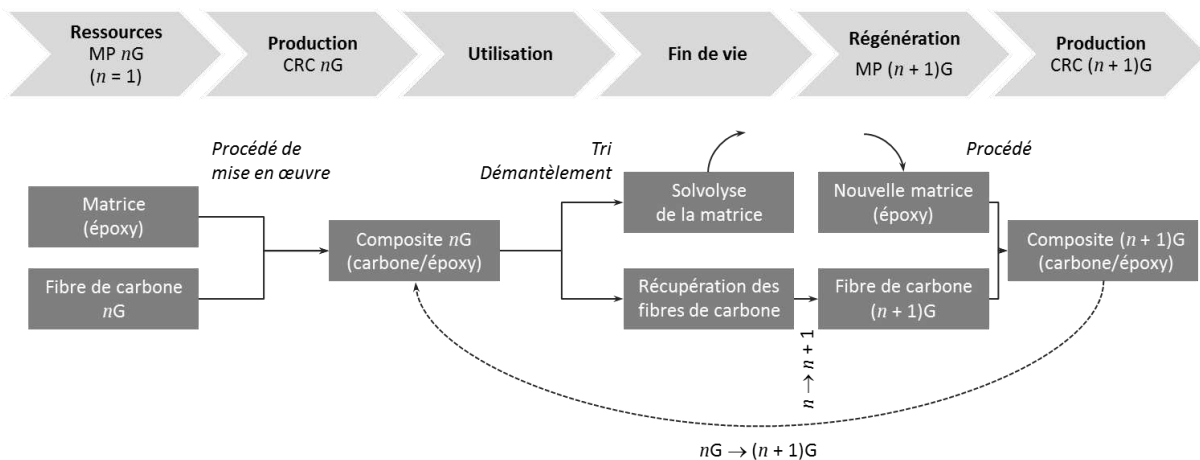


Figure 1. Cycle de vie d'un CRC, des matières premières à la régénération de la fibre.

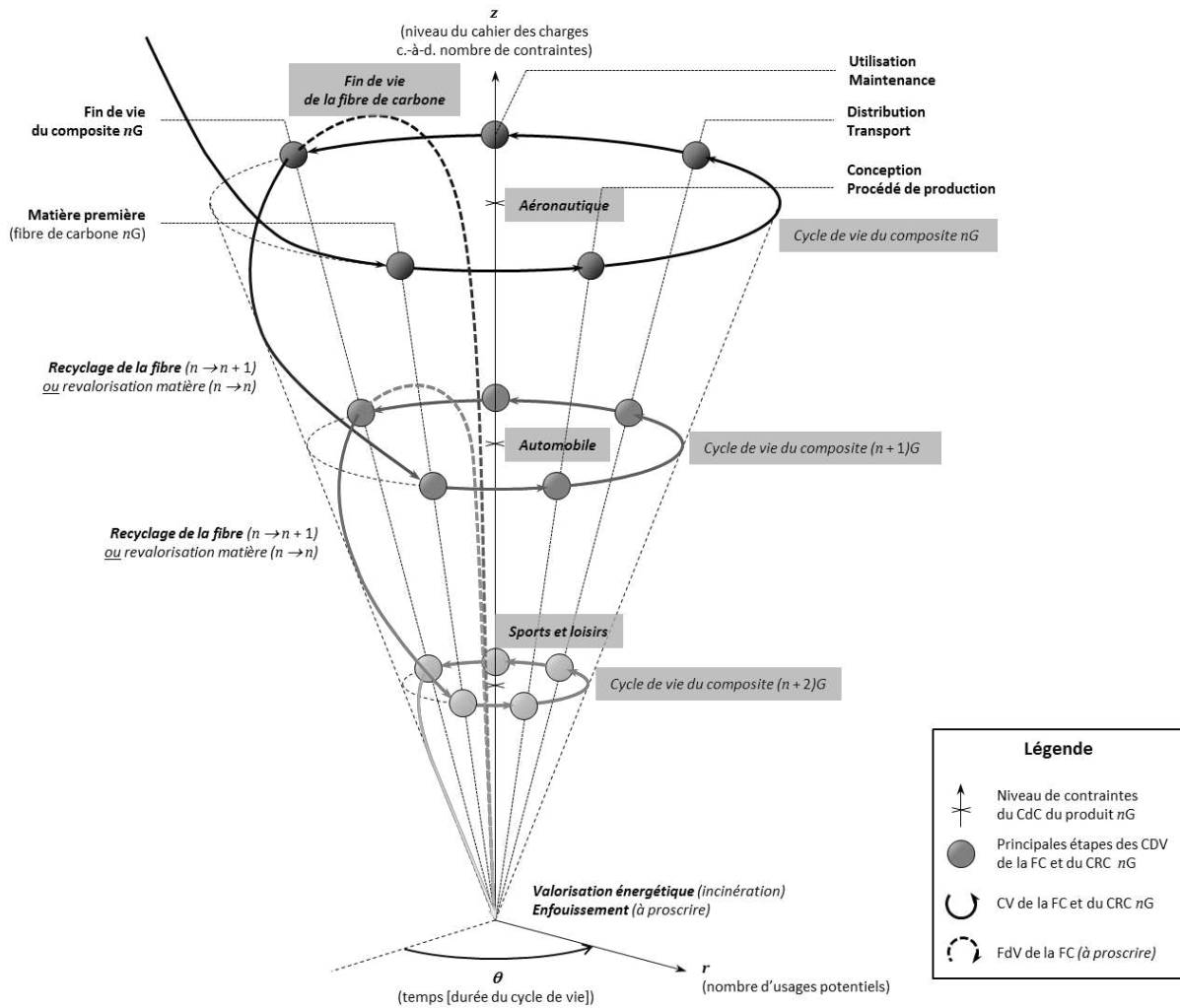


Figure 2. Représentation en coordonnées cylindriques du cycle de vie de la fibre de carbone. Intégration des (r)FC dans les cycles de vie successifs de plusieurs produits, en fonction du niveau de contraintes z du cahier des charges. Le rayon r dépend du nombre d'utilisations potentielles de la (r)FC. θ représente le temps (modulo la durée du n ème cycle).

- et fin de vie des produits.

La cote z du cycle de vie de chaque matériau dépend du niveau de contraintes imposé par leur cahier des charges. Trois exemples sont choisis ($n \in [1 ; 3]$), en supposant des intégrations successives en aéronautique, puis dans le secteur automobile et enfin dans le domaine des sport et loisirs. Notons toutefois que même si le cycle *Sports et loisirs* a une ordonnée inférieure à celle de l'*Automobile*, il pourrait être situé au même niveau, au regard de leurs contraintes d'usage.

Le rayon r de chaque cycle dépend directement du nombre d'utilisations potentielles de la fibre de carbone recyclée, selon ses propriétés mécaniques (réelles ou supposées), et de sa remise en forme (c.-à-d. de la nature du semi-produit).

Enfin, l'angle θ représente le temps (modulo la durée du n ème cycle).

Basée sur ce cycle de vie et sur différentes expertises, chaque étape peut être détaillée, et une ligne de recyclage de la fibre de carbone peut être conçue. Une représentation arborescente détaille les procédés envisageables à la Figure 3. Les produits nG sont ainsi :

- triés. En effet, il est impossible de recycler différents types de matrice simultanément. Par ailleurs, certains constituants (p. ex. métalliques pour le comportement électrique), ne sont pas compatibles avec certains procédés de recyclage ;
- démantelés (tous les inserts métalliques doivent être extraits) et coupés (c'est à dire adaptés au réacteur de solvolyse) ;
- et enfin solvolysés.

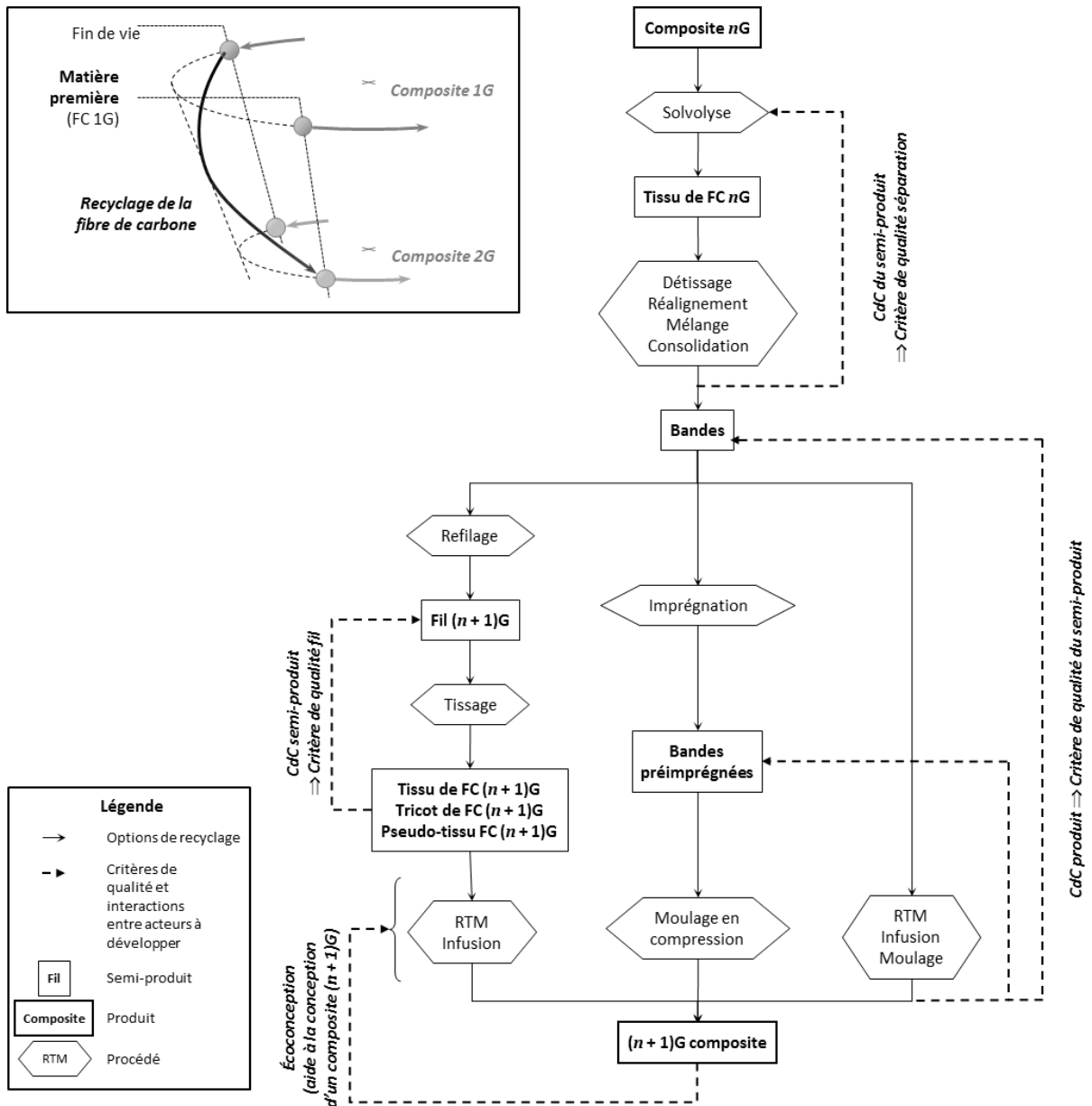


Figure 3. Ligne de recyclage d'un composite à fibre de carbone et matrice thermodurcissable (détail de la Figure 2) et arborescence associée. Cette dernière montre d'une part les interactions entre acteurs et d'autre part, les critères de qualité associés à développer.

Le tissu de carbone peut alors être détissé. L'I2M a développé un prototype permettant le détissage de renforts carbonés. Les fibres sont ainsi peignées, éventuellement mélangées (selon le type de fibres disponibles, ou la qualité du renfort choisi pour le composite ($n + 1$)G), et renforcées pour être intégrées plus facilement dans l'étape suivante du recyclage (p. ex. prépreg). Selon le procédé d'élaboration choisi du composite ($n + 1$)G (RTM, infusion, etc.), les fibres peuvent être filées, puis retissées ou tricotées, ou mises à disposition sous forme de bandes prépregs, pour enfin mettre en œuvre les pièces composites. Les interactions entre les différents acteurs et les critères de qualité associés seront développés ci-après.

3. Développement d'une ligne de recyclage des CRC

Il est nécessaire de développer un réseau de recyclage des CRC : les dépôts sont en augmentation constante, et ceux-ci ne sont pas stockables indéfiniment ni incinérables. De plus, les CRC ont une valeur intrinsèque qui nécessite de développer leur recyclage.

Puisqu'il est possible d'obtenir de plus longues fibres, permettant ainsi un éventail d'utilisation plus grand après recyclage, nous proposons une méthodologie qui s'appuie sur les étapes suivantes :

1. définition des prérequis ;
2. identification des acteurs ;
3. identification des interactions entre les différents acteurs.

3.1. Définition des prérequis

Comme largement exposé ci-avant, nous devons étudier les possibilités d'amélioration de la fin de vie de la fibre pour développer une ligne de recyclage viable pour les CRC. Elle sera basée sur un procédé qui permet de récupérer les fibres de carbone les plus longues.

3.2. Identification des acteurs de la ligne de recyclage

Les acteurs de la filière de recyclage des CRC sont clairement identifiés (Figure 4). En premier lieu, les *fournisseurs* produisent renfort et matrice. Les *concepteurs* interviennent ensuite dans les filières aéronautique, automobile et sports et loisirs. Leurs *clients* sont alors soit des industriels, soit des particuliers. Enfin, les *spécialistes de la fin de vie* (potentiellement les mêmes acteurs) ont en charge le démantèlement, le tri et le recyclage de pièces composites.

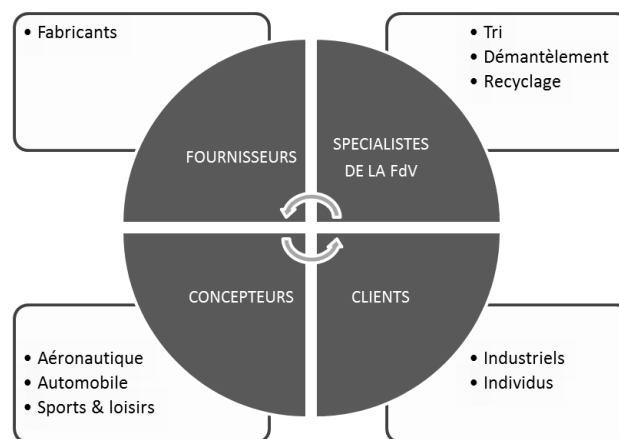


Figure 4. Acteurs du réseau de recyclage des CRC

3.3. Identification des interactions possibles entre les acteurs

La Figure 5 correspond à la Figure 2 vue du dessus. Les cycles de vies de produits issus des trois domaines choisis sont reliés par la récupération et la redistribution des fibres de carbone en fin de vie de chaque produit. Les acteurs (fournisseurs, concepteurs, clients et spécialistes de la FdV) et leurs interactions sont identifiables ; un résumé en est donné au Tableau 3.

- Les fournisseurs adaptent leur offre aux besoins des concepteurs (étude de marché). Ils sont également liés aux recycleurs qui prennent en compte le cahier des charges du produit et le coût des matières premières.
- Les concepteurs analysent les retours clients à partir d'études de marché ; ils choisissent en outre les fournisseurs en fonction de leurs besoins (cahier des charges du produit) et du coût.
- Les clients décident d'acheter ou non un produit en fonction de choix multicritères ; les industriels sont liés aux recycleurs par la législation, et les particuliers grâce à une sensibilisation au respect de l'environnement.
- Enfin, les recycleurs collectent les CRC usagés dont le gisement doit être pris en compte puisqu'il devient une nouvelle ressource. Le recycleur devient ainsi un nouveau fournisseur en revalorisant les déchets au profit de leur incinération. Ils choisissent le meilleur procédé de recyclage pour fournir au concepteur ($n + 1$) le semi-produit le mieux adapté à ses besoins.

Il faut à présent se concentrer sur les liens entre clients et recycleurs. Un réseau de tri et de collecte doit être développé pour alimenter une ligne de recyclage à l'échelle industrielle. Il est important que ce réseau soit local ou régional. En effet, les industriels ne sont plus les seuls à être impliqués dans le cycle, et les clients des sports et loisirs doivent y avoir accès facilement.

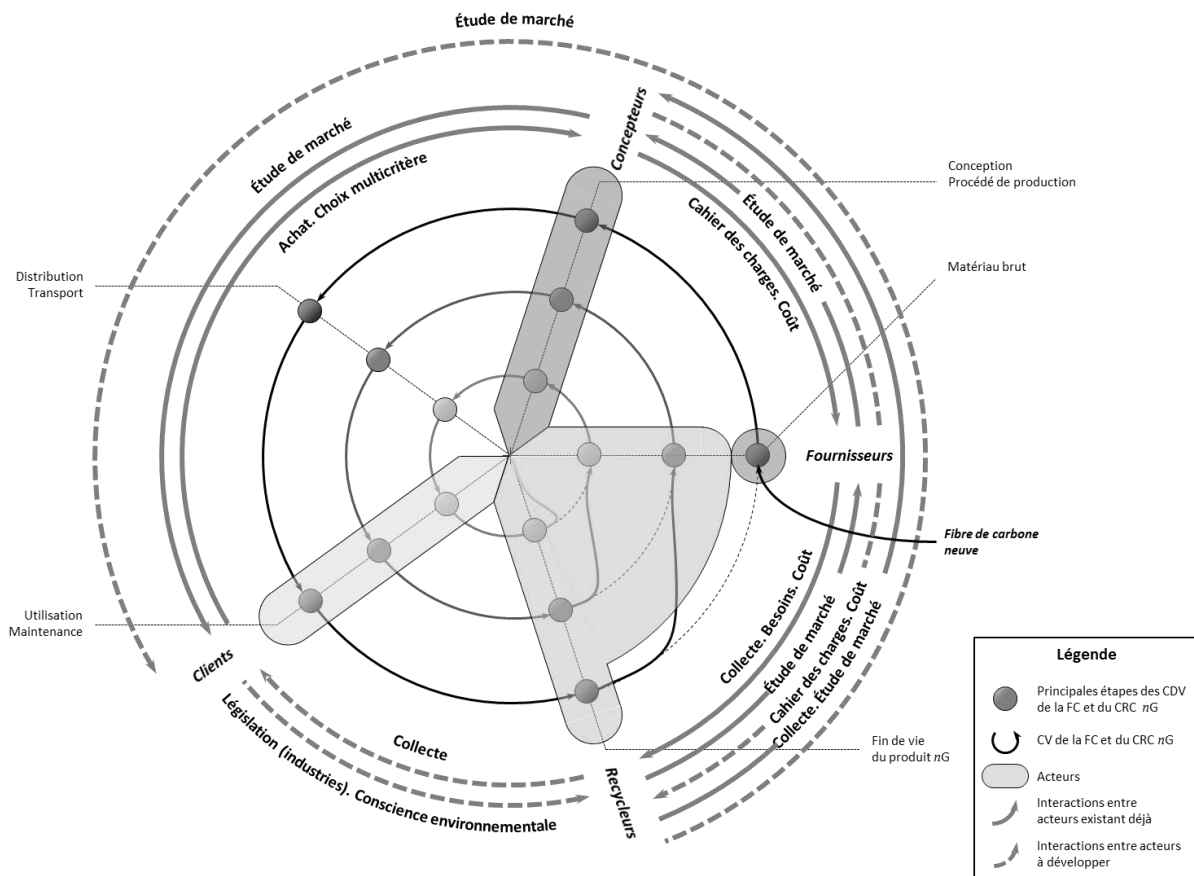


Figure 5. Figure 2 vue du dessus. Mise en avant des acteurs (fournisseurs, concepteurs, clients et recycleurs) et de leurs interactions. Les recycleurs deviennent les nouveaux fournisseurs dans le cycle de vie de la fibre de carbone.

	Fournisseurs	Concepteurs	Clients	Recycleurs
	↓	↓	↓	↓
Fournisseurs ⇐	s. o.	Cahier des charges Coût	∅	Étude de marché
Concepteurs ⇐	Étude de marché	s. o.	Achat Choix multicritère	Collecte Étude de marché
Clients ⇐	∅	Étude de marché	s. o.	<i>Collecte Étude de marché</i>
Recycleurs ⇐	Collecte Besoins Coût	<i>Cahier des charges Coût</i>	<i>Législation (industries) Conscience environnementale</i>	s. o.

Tableau 3. Interactions entre acteurs (s. o. : sans objet ; ∅ : pas d'interaction)
(Les interactions devant être développées sont indiquées en gras et italique)

Dans le même temps, nous espérons favoriser les échanges entre concepteurs et recycleurs afin d'innover dans la définition de nouveaux produits recyclés. Cela signifie que les informations et les compétences des deux secteurs doivent être partagées. Toutefois, ceci implique également que la connaissance des matériaux (p. ex. propriétés mécaniques) doivent être améliorées, à la fois pour les concepteurs et les recycleurs. Par conséquent, il est nécessaire d'inclure un tiers dans la discussion : les experts matériaux et la caractérisation mécanique.

Enfin dans la ligne de recyclage des fibres de carbone, les discussions entre ces acteurs doivent être améliorées par les cahiers des charges des semi-produits et ces échanges doivent être formalisés (lignes en pointillés dans la Figure 3).

3.4. Exemples d'applications. Démonstrateurs mis en œuvre à l'Institut de Mécanique et d'Ingénierie - Bordeaux (I2M)

Il est possible de développer des marchés spécifiques prêts à utiliser des fibres de carbone recyclées. Les sports et loisirs proposent d'importants marchés de niche parfaitement adaptés à la taille du gisement qui pourraient rendre effective l'utilisation des rCRC. Deux exemples sont choisis parmi les démonstrateurs mis en œuvre à l'Institut de Mécanique et d'Ingénierie - Bordeaux, dans le contexte des projets RECCO [37].

3.4.1. Guêtre équestre

M. Rooryck a créé une start-up développant des produits composites haut de gamme pour le domaine équestre. Il souhaitait que son entreprise et ses produits se démarquent visuellement de la concurrence des grands groupes et intègrent une notion forte de respect de l'environnement. L'utilisation de fibres de carbone recyclées se présentait alors comme l'opportunité d'intégrer ces deux concepts.

Une guêtre équestre qui protège les tendons des chevaux a été mise en œuvre (Figure 6). Une masse (approximativement 130 g) et une raideur équivalentes à celles de la guêtre de série ont été atteintes. L'aspect de la guêtre 2G est en revanche très différent de celui du produit neuf, mais cela la rend très attractive par son originalité. Nous avons maintenant un bon espoir de susciter l'intérêt des producteurs de pièces d'aspect en matériau composite qui pourront ainsi intégrer une fibre de carbone à coût modéré avec un design inédit.



Figure 6. Guêtre de cheval Rooryck.
Caractéristiques attendues : aspect,
légèreté et résistance au choc



Figure 7. Manivelle de pédalier Natec.
Caractéristiques attendues : résistance spécifique
et masse équivalente à celle de la manivelle
du marché (approx. 185 g)

De plus, comme la fibre recyclée offre moins de compacité que la fibre 1G, il se crée un effet sandwich qui donne une épaisseur plus importante au produit contenant des fibres 2G. Ainsi, même si la rigidité de la fibre recyclée était inférieure à celle de la fibre neuve (ce qui n'est pas obligatoire), la raideur du produit contenant les fibres recyclées se trouverait augmentée. Cette particularité permet d'utiliser une plus faible quantité de fibres de carbone recyclées pour un même produit. Par conséquent, l'utilisation de fibres 2G pour des produits souples et/ou d'aspect se révélera certainement très économique en raison à la fois du faible prix de la fibre recyclée et de la possibilité d'utiliser moins de matière.

3.4.2. Manivelle de pédalier de vélo de course

Pour mettre en valeur la résistance de la fibre de carbone recyclée, une application concernant un plus large public a été cherchée. Elle devait être soumise à des sollicitations mécaniques importantes, dans une pièce de forme séduisante et sur un produit performant. La société Natec fabrique l'un des pédaliers de vélo de course les plus légers du monde. La manivelle véhicule l'image de la haute performance mécanique à la portée de tous.

La manivelle 2G réalisée présente un aspect unique et hétérogène dans la répartition des fibres (Figure 7). Sa masse est de 187 g, contre 163 g pour la manivelle 1G. Il a été montré à l'I2M que l'utilisation de fibres recyclées est plus simple que l'utilisation de tissus de carbone. L'utilisation de la fibre 2G permet de disposer les patchs de façon simple et entraîne moins de découpe que sur tissus neufs. De plus, l'utilisation de patchs unidirectionnels dans un produit sollicité simplement comme une manivelle permet de mettre des fibres préférentiellement dans l'axe des efforts et pourrait donc conduire à une rationalisation de leur utilisation. En outre, la réalisation des formes courbes qui nécessite beaucoup de coupes sur un tissu neuf, se réalise ici aisément car elle ne nécessite qu'une simple courbure des fibres recyclées. Enfin, peu de déplacements de fibres ont été observés au cours du processus, ce qui valide parfaitement la possibilité d'utiliser des fibres 2G pour un moulage en compression.

4. Conclusion et perspectives

Le recyclage des CRC est une problématique assez récente consécutive à l'augmentation de leur utilisation. La conséquence directe est une faible réglementation concernant les matériaux composites qui sont simplement mentionnés dans les directives DEEE et VHU. Ceci explique aussi la très récente prise de conscience des industriels à promouvoir le recyclage des CRC, et son absence ou presque pour les particuliers. Toutefois, un réseau de recyclage capable de traiter les CRC (c.-à-d. pas uniquement par valorisation énergétique) tend à se développer.

Nous avons montré que l'amélioration des plateformes de tri et de démantèlement locales ou régionales reste nécessaire. Basé sur le procédé de solvolysé de la matrice, le recyclage des CRC est réalisable. Mais un tri, un réseau de collecte et des applications pour la rFC doivent être développés pour alimenter la ligne de recyclage à une échelle industrielle. Tous les acteurs à impliquer dans cette ligne existent déjà ; notre objectif est donc de les mettre en relation. Encourager la discussion entre les concepteurs et les recycleurs afin d'innover dans la définition de nouveaux produits composites recyclés va induire la création de plateformes d'échanges, permettant un partage de l'information. Toutefois, elle implique également que les matériaux et les semi-produits doivent être optimisés afin d'atteindre les propriétés mécaniques attendues par les futurs utilisateurs, c'est-à-dire respectivement les recycleurs et les concepteurs. Ainsi, il est nécessaire d'inclure un tiers dans la discussion : les experts matériaux, qui caractériseront produits et semi-produits. Enfin, encourager et améliorer le traitement de la fin de vie de la fibre de carbone permettrait de renforcer le lien entre l'aéronautique, l'automobile, et les sports et loisirs. Ceci sera réalisable si et seulement si une demande pour ces nouveaux composites se développe.

Enfin, les industries des sports et loisirs semblent déjà proposer les marchés de niche les plus aptes à promouvoir l'utilisation de rCRC.

Notre proposition vise à identifier acteurs et paramètres matériaux et procédés pertinents pour l'utilisation des fibres de carbone recyclés dans des applications de seconde vie, voire plus. Ce travail se veut le point de départ d'une analyse sur les échanges d'informations et de données techniques (quoi échanger, à quel moment dans les étapes de conception, avec quels objectifs, etc.) entre les concepteurs et les recycleurs pour favoriser un meilleur taux de valorisation des produits composites et ainsi faire émerger cette filière. Ceci devra se faire sur deux niveaux, en facilitant d'une part le recyclage, et d'autre part en stimulant l'usage de ces matériaux recyclés en conception.

Références

- [1] R. PIÑERO-HERNANZ, C. DODDS, J. HYDE, J. GARCÍA-SERNA, M. POLIAKOFF, E. LESTER, M. COCERO et K. WONG, *Chemical recycling of carbon fibre reinforced composites in nearcritical and supercritical water*, 2008.
- [2] EUROPEAN PARLIAMENT et EUROPEAN COUNCIL, *Directive 2008/34/EC of the European Parliament and of the Council of 11 March 2008 amending Directive 2002/96/EC on waste electrical and electronic equipment (WEEE), as regards the implementing powers conferred on the Commission*, 2008.
- [3] THE COUNCIL OF THE EUROPEAN UNION, *Council Directive 1999/31/EC of 26 April 1999 on the landfill of waste*, 1999.

- [4] PARLIAMENT EUROPEAN et COUNCIL, *Corrigendum to Directive 2006/121/EC of the European Parliament and of the Council of 18 December 2006 amending Council Directive 67/548/EEC, concerning the Registration, Evaluation, Authorisation and Restriction of Chemicals (REACH) and establishing a European Chemicals Agency (OJ L 396, 30.12.2006)*, 2006.
- [5] CONSEIL DE L'UNION EUROPÉENNE et PARLEMENT EUROPEEN, *Directive 2000/53/ce du Parlement Européen et du Conseil du 18 septembre 2000 relative aux véhicules hors d'usage*, 2000.
- [6] S. PICKERING, *Recycling technologies for thermoset composite materials-current status*, 2006.
- [7] Y. LIU, L. MENG, Y. HUANG et J. DU, *Recycling of Carbon/Epoxy Composites*, 2004.
- [8] S. PIMENTA et S. PINHO, *Recycling carbon fibre reinforced polymers for structural applications: Technology review and market outlook*, 2011.
- [9] P. KRAWCZAK, *Recyclage des composites*, 2011.
- [10] O. MANTAUX, L. CHIBALON, T. LORRIOT, J. AURREKOETXEA, A. PUERTO, A. AROSTEGI et I. URRUTIBEASCOA, *Recycling study of end of life products made of ABS resin*, 2004.
- [11] O. MANTAUX, C. AYMONIER et M. ANTAL, 2009, *Recycling of carbon fibre reinforced composite materials with super- critical water dissolution*, juin 2009.
- [12] C. GALET, *Recyclage des déchets contenant des fibres de carbone issus de l'industrie des composites*, 2006.
- [13] N. PERRY, F. KROMM, O. MANTAUX et A. PILATO, *Composite eco-design*, 2010.
- [14] J. PALMER, O. GHITA, L. SAVAGE et K. EVANS, *Successful closed-loop recycling of thermoset composites.*, 2009.
- [15] A. CUNLIFFE, N. JONES et P. WILLIAMS, *Pyrolysis of composite plastic waste.*, 2003.
- [16] L. MEYER, K. SCHULTE et E. GROVE-NIELSEN, *CFRP-recycling following a pyrolysis route: process optimization and potentials.*, 2009.
- [17] K. WONG, S. PICKERING, T. TURNER et N. WARRIOR, *Compression moulding of a recycled carbon fibre reinforced epoxy composite.*, 2009a.
- [18] S. ALSOP, *Pyrolysis off-gas processing.*, 2009.
- [19] S. PICKERING, *Carbon fibre recycling technologies: what goes in and what comes out?*, 2009c.
- [20] G. JIANG, S. PICKERING, G. WALKER, K. WONG et C. RUDD, *Surface characterisation of carbon fibre recycled using fluidised bed.*, 2008c.
- [21] K. WONG, S. PICKERING, T. TURNER et N. WARRIOR, *Preliminary feasibility study of reinforcing potential of recycled carbon fibre for flame-retardant grade epoxy composite.*,

- 2007b.
- [22] T. TURNER, S. PICKERING et N. WARRIOR, *Development of high value composite materials using recycled carbon fibre.*, 2009.
- [23] S. PICKERING, T. TURNER et N. WARRIOR, *Moulding compound development using recycled carbon fibres.*, 2006a.
- [24] N. WARRIOR, T. TURNER et S. PICKERING, *AFRECAR and HIRECAR Project results.*, 2009.
- [25] S. PICKERING, R. KELLY, J. KENNERLEY, C. RUDD et N. FENWICK, *A fluidized bed process for the recovery of glass fibres from scrap thermoset composites.*, 2000d.
- [26] G. JIANG, S. PICKERING, E. LESTER, T. TURNER, K. WONG et N. WARRIOR, *Characterisation of carbon fibres recycled from carbon fibre/epoxy resin composites using supercritical n-propanol.*, 2009b.
- [27] M. NAKAGAWA, K. SHIBATA et H. KURIYA, *Characterization of CFRP using recovered carbon fibers from waste CFRP.*, 2009.
- [28] G. MARSH, *Carbon recycling: a soluble problem.*, 2009.
- [29] J. GOSAU, T. WESLEY et R. ALLRED, *Carbon fiber reclamation from state-of-the-art 2nd generation aircraft composites.*, 2009.
- [30] MENZOLIT, *Menzolit BMC 0400 Data Sheet.* Menzolit GmbH., 2004a.
- [31] MENZOLIT, *Menzolit BMC 1400 Data Sheet.* Menzolit GmbH., 2004b.
- [32] BMCI, *BMC 304 Data Sheet.* Bulk Molding Componds Inc., 2010a.
- [33] BMCI, *BMC 310 Data Sheet.* Bulk Molding Componds Inc., 2010b.
- [34] LEXUS, *Lexus LFA Press Information 2009.* Toyota (GB) PLC – Lexus Division., 2009.
- [35] MENZOLIT, *Menzolit SMC 1800 Data Sheet.* Menzolit GmbH., 2008c.
- [36] C. KONG, J. BANG et Y. SUGIYAMA, *Structural investigation of composite wind turbine blade considering various load cases and fatigue life.*, 2005.
- [37] O. MANTAUX et D. LERAY, *Rapport final – projet RECCO 2010 – partie valorisation I2M MPI*, 2010.