



HAL
open science

Optimisation de la fabrication additive de composites biosourcés renforcés par des fibres courtes de chanvre

Ndeye Fatim Niang, Thierry Barrière, Vincent Placet, Sami Holopainen

► To cite this version:

Ndeye Fatim Niang, Thierry Barrière, Vincent Placet, Sami Holopainen. Optimisation de la fabrication additive de composites biosourcés renforcés par des fibres courtes de chanvre. JNC23: Journées Nationales sur les Composites 2023, AMAC, UFC, Supmicrotech-ENSMM, CNRS, Jul 2023, Besançon, France. hal-04606807

HAL Id: hal-04606807

<https://hal.science/hal-04606807>

Submitted on 10 Jun 2024

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.

Optimisation de la fabrication additive de composites biosourcés renforcés par des fibres courtes de chanvre

Optimisation of the additive manufacturing of short hemp fibers biocomposites

Ndeye Fatim Niang¹, Thierry Barriere¹, Vincent Placet¹ et Sami Holopainen²

1 : Département de Mécanique appliquée, Laboratoire Femto-st
Université de Franche-Comté
24 rue de l'épitahe, 25000 Besançon Cedex 3
e-mail : ndeye.niang@femto-st.fr et thierry.barriere@univ-fcomte.fr

2 : Département de Génie Civil
Université de Tampere
P.O.BOX 600, FI-33014 Tampere, Finland.
e-mail : sami.holopainen@tuni.fi

Résumé

Cette étude porte sur l'optimisation de l'impression 3D de composites PLA renforcés au chanvre afin d'améliorer leurs propriétés mécaniques. Les composites à base de fibres végétales sont largement utilisés dans l'industrie automobile pour le moulage par injection en raison de leur légèreté, de leur prix abordable et de leurs bonnes propriétés mécaniques. Toutefois, les performances mécaniques de ces composites après impression 3D sont inférieures à celles du moulage par injection. Pour résoudre ce problème, l'étude utilise une imprimante à granulés pour un meilleur contrôle des formulations. Des additifs tels que le polyéthylène glycol (PEG) et l'acide stéarique (SA) sont étudiés pour leur influence sur les pièces imprimées. L'ajout d'additifs réduit la viscosité, ce qui améliore l'imprimabilité et la précision dimensionnelle. L'étude montre que l'inclusion de PEG améliore la ductilité du matériau, augmentant la déformation à la rupture de 85% sans affecter la résistance à la traction et la rigidité. En revanche, la présence d'acide stéarique réduit la contrainte de 25% et la déformation à la rupture de 38%. Les deux variantes de PEG étudiées, 1500 et 20000, ont eu des performances similaires, ce qui indique qu'elles sont également efficaces. Le taux de porosité est resté le même mais a été plus localisé avec la présence d'additifs entre les couches.

Abstract

This study focuses on optimising the 3D printing of hemp-reinforced PLA composites in order to improve their mechanical properties. Plant fibre composites are widely used in the automotive industry for injection moulding due to their light weight, affordability and good mechanical properties. However, the mechanical performance of these composites after 3D printing is inferior to that of injection moulding. To address this issue, the study uses a pellet printer for better control of formulations. Additives such as polyethylene glycol (PEG) and stearic acid (SA) are studied for their influence on the printed parts. The addition of additives reduces viscosity, which improves printability and dimensional accuracy. The study shows that the inclusion of PEG improves the ductility of the material, increasing strain at break by 85% without affecting tensile strength and stiffness. In contrast, the presence of stearic acid reduces stress by 25% and strain at break by 38%. The two PEG variants studied, 1500 and 20000, performed similarly, indicating that they are equally effective. The porosity rate remained the same but was more localised with the presence of additives between the layers.

Mots Clés : Composites à matrice polymère (PMC), Fibres végétales, Impression 3D, Propriétés élastiques, Rhéologie, Moulage par injection

Keywords : Polymer-matrix composites (PMCs), 3D printing, Elastic properties, Rheology, Injection moulding

1. Introduction

Les fibres végétales constituent une alternative aux fibres synthétiques généralement peu respectueuses de l'environnement qui dominent actuellement le marché des composites[1]. Légers, peu coûteux et dotés de bonnes propriétés mécaniques, les composites à base de fibres végétales sont de plus en plus utilisés dans le secteur automobile pour le moulage par injection[2]. Cependant, leurs propriétés

mécaniques après impression 3D peinent à rivaliser avec celles après moulage par injection, malgré le développement du procédé FDM (Fused Deposition Modeling), qui s'est progressivement orienté vers des performances mécaniques contrôlées par la température[3] et par les paramètres de tranchage et d'impression. L'objectif de cette recherche est d'optimiser l'impression 3D de PLA renforcé avec des fibres courtes de chanvre afin d'améliorer leurs propriétés mécaniques. Afin de mieux contrôler les formulations utilisées, nous travaillons avec une imprimante à granulés. La technologie de fabrication par fusion de filaments (FFF) nécessite la production d'un filament homogène présentant un équilibre entre rigidité et flexibilité afin de garantir des performances d'extrusion et une imprimabilité optimales[4]. En revanche, la technologie de fabrication par fusion de granulés (FGF) utilise directement des granulés dont les exigences mécaniques sont moindres. Cette technologie utilise des granulés comme matériau d'entrée qui sont introduits dans une cavité chauffée par l'intermédiaire d'une vis. Le matériau fondu est ensuite extrudé à travers la buse d'impression pour produire la pièce en 3D. Cette optimisation implique une étude de la rhéologie, des propriétés physiques et thermiques et de l'influence d'additifs tels que le polyéthylène glycol (PEG) comme plastifiant et l'Acide stearique (SA) comme surfactant[5]. Les plastifiants sont des additifs qui améliorent la biocompatibilité et la flexibilité des polymères et d'autres matériaux[6]. Les plastifiants contribuent également à réduire la viscosité du matériau, ce qui le rend plus facile à extruder et à imprimer. L'impression 3D des biocomposites est ainsi plus efficace, plus rentable et plus respectueuse de l'environnement. Les plastifiants peuvent également contribuer à améliorer les propriétés physiques et mécaniques des pièces bio-composites imprimées en 3D [7]. Les surfactants sont des composés qui abaissent la tension superficielle entre deux substances, ce qui leur permet de se mélanger plus facilement. Ils peuvent améliorer leurs propriétés d'écoulement et réduire les frottements pendant le processus d'impression. Cela permet d'assurer un dépôt homogène et régulier du matériau pendant l'impression. En outre, l'agent tensioactif réduit la viscosité de cisaillement. Cette étude explore l'impact des additifs sur les pièces imprimées en examinant la réponse thermique, le comportement rhéologique et la microstructures des pièces imprimées et les propriétés mécaniques en traction.

1.1. Matériaux et méthodes

1.1.1. Préparation composites

Le matériau utilisé provient de la société APM. Il s'agit d'un mélange à base de PLA et de fibres de chanvre chargées à 30 %. La société APM nous assure avoir un matériau très homogène et des granulés sans porosité. Le composite de PLA (acide polylactique) avec 30% de fibres de chanvre a été caractérisé avec succès, révélant un indice de fluidité (MFI) de 9,2 g/10min, une densité de fusion de 0,877 à 190°C et un taux d'humidité de 0,11%. Ces résultats montrent une fluidité modérée du composite lors de sa fusion, une compacité satisfaisante du matériau fondu et une très faible teneur en eau. Les premiers essais d'impression ont été réalisés avec ce matériau mais l'extrusion et la qualité des pièces imprimées restaient à désirer. C'est pourquoi le mélange à 30% a été dilué à 20%. Des additifs ont également été utilisés, à savoir de l'acide stéarique et du polyéthylène glycol avec une masse molaire de 1500 et 20000. La dilution est réalisée à partir du liant composé du PLA-PLI005 de Natureplast, associé aux additifs tensioactifs et plastifiants. Le liant est constitué de 85% en poids de PLA et de 15% en poids d'additifs respectivement SA, PEG1500 et PEG2000. Les températures de fusion sont obtenues par analyse DSC voir tableau 1 .

Polymère	Melting temperature (°C)	Degradation temperature (°C)
PLA	175± 3	290 ± 1
PEG	<62± 1	200 ± 1
SA	68 ± 1	180 ± 1

TAB. 1. – Propriétés thermiques du liant

Le matériau obtenu à partir de l'APM est dilué avec le liant afin d'obtenir un mélange de 20% de fibres et d'additifs de 5% en poids respectivement SA et PEG voir dans le tableau 2. Le mélange est effectué à une vitesse de 30 rpm et à une température de 190°C sur un système d'extrusion HAAKE PolyLab OS. Ce mélange en deux étapes avec d'abord le liant puis la dilution nous permet d'avoir un certain degré d'homogénéité du mélange.

Mixture	PLA-PLI 005	Chanvre	Acide Stearique	PEG 1500	PEG 20000
M1	80%	20%	-	-	-
M2	75%	20%	5%	-	-
M3	75%	20%	-	5%	-
M4	75%	20%	-	-	5%

TAB. 2. – Proportions de mélange

1.1.2. Caractérisation rhéologique des composites

Un rhéomètre rotatif HAAKE MARS III avec une géométrie cône-plan C35 2° de 35 mm de diamètre a été utilisé pour déterminer la viscosité de cisaillement des formulations étudiées dans une géométrie cône-plan. Les mesures ont été effectuées à différentes températures, notamment à 185, 190 et 195 °C pendant 300s pour obtenir les courbes de performance de viscosité correctes.

1.1.3. Protocole d'impression

L'extrudeuse à granules Direct3D, Mini Minos3D M 3D (cf fig. 1) est adaptée à l'impression 3D de granules très chargés. Elle fonctionne en poussant les granules à travers une vis dans une zone de fusion, où ils sont chauffés et fondus. Le matériau fondu est ensuite extrudé et déposé couche par couche sur un plateau d'impression en déplaçant la tête d'extrusion. L'écoulement du composite fondu est calibré pour assurer une bonne adhérence entre les couches. Le fichier STL du modèle de conception 3D a été généré à l'aide du logiciel CREO Parametric 6.0.5.1.

La buse d'impression 3D a un diamètre de sortie cylindrique de 1,2 mm. La buse est chauffée à 195°C et le plateau d'impression à 60°C. La géométrie est construite en couches de 0,4 mm. Les pièces sont imprimées avec un taux de remplissage de 100% et une vitesse de 40 mm/s. Le matériau est séché à 60°C pendant 3 heures. Des plaques de 170x170mm ont été imprimées et ensuite découpées au laser afin d'obtenir les éprouvettes de traction.

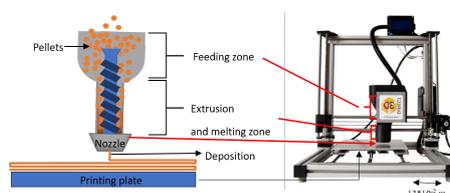


FIG. 1. – Extrudeuse à granules Direct3D : Description schématique (à gauche) et image (à droite)

1.1.4. Description des essais mécaniques

Les essais de traction ont été réalisés à température ambiante à l'aide d'une machine d'essai MTS Criterion Model 45 équipée d'une cellule de charge de 5 kN. La vitesse de déplacement était réglée à 2 mm/min. Les échantillons étaient conformes à la géométrie spécifiée dans la norme ISO 527-2 type 1B3. Cinq échantillons ont été testés pour chaque condition et les valeurs moyennes du module d'Young, de la résistance à la traction et de la déformation à la rupture ont été déterminées. Le calcul

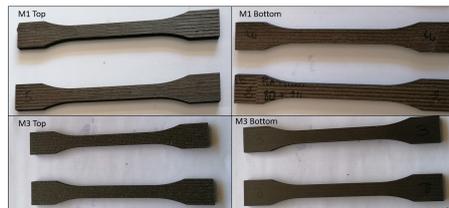


Fig. 2. – Eprouvettes ISO 527-2 type 1B imprimées

du module d'Young a été effectué dans une plage de déformation comprise entre 0,05 et 0,25%. Avant les essais de traction, les échantillons ont subi une période de conditionnement de 14 jours dans une étuve dont la température était de 24°C et l'humidité relative de 45% afin de les stabiliser.

1.1.5. Caractérisation tomographique

La tomographie à rayons X est utilisée dans le domaine de la caractérisation des matériaux et de la mise au point des procédés de mise en forme. Dans cette étude, on utilise un tomographe RX Solution, capable de produire des images en coupe transversale avec une résolution allant jusqu'à 5 μ m. Ce tomographe est équipé d'un générateur de rayons X d'une puissance de 230 kV. Ce tomographe a été utilisé pour observer la distribution et le niveau de porosité des matériaux étudiés.

1.2. Résultats

1.2.1. Modèle de viscosité

Les valeurs de la viscosité de cisaillement diminuent avec l'augmentation du taux de cisaillement, ce qui correspond au comportement pseudo-plastique. La présence des additifs dans les formulations diminue la viscosité du matériau. On constate que les mélanges M3 et M4 avec respectivement le PEG 1500 ET LE PEG 20000 ont une valeur de viscosité quasi-équivalente. La formulation M2 quant à elle présente une plus grande fluidité en raison du rôle d'agent tensioactif de l'acide stéarique. La viscosité du mélange M2 est plus faible et diminue plus fortement avec l'augmentation de la température (cf fig3). Dans le contexte de l'extrusion de matériaux composites, tels que les composites renforcés de fibres végétales, une faible viscosité est souhaitée pour faciliter le processus d'impression en 3D. Une viscosité réduite permet à la matière fondue d'être extrudée de manière plus régulière et cohérente à travers les buses et les filières utilisées dans les processus d'extrusion, ce qui conduit à une meilleure précision dimensionnelle des pièces imprimées. Pour modéliser le comportement de la viscosité de

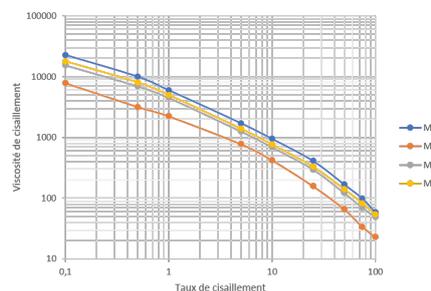


Fig. 3. – Viscosité de cisaillement des formulations à 195°C

ces mélanges, le modèle de Hidalgo et al (Eq.1) est utilisé[8] :

$$\eta(\gamma, T, \phi) = \eta_0 \cdot e^{\left(\frac{E_a}{RT}\right)} (1 + (\lambda\gamma)^a)^{\frac{n-1}{a}} \left(\frac{\phi_m}{\phi_m - \phi}\right)^m \quad (\text{Eq. 1})$$

où Φ_m est la valeur maximale du taux de chargement exprimée en volume, η_0 est la viscosité de cisaillement nulle, η est Viscosité (Pa.s), T est la température absolue (K), E_a est l'énergie d'activation

($Jmol^{-1}$), R est la constante universelle des gaz ($Jmol^{-1}K^{-1}$), n est l'indice de performance, γ est le temps de relaxation, a est le paramètre sans dimension décrivant la transition entre le premier plateau newtonien et la zone de la loi de puissance.

Afin d'utiliser le modèle, il est nécessaire de déterminer les paramètres appropriés qui décrivent le mieux le comportement du matériau. Ces paramètres, présentés dans le tableau 3, sont généralement déterminés par un processus d'ajustement du modèle aux données expérimentales.

Formulation	Ea	$\eta_0(10^4 Pa.s)$	$\gamma(s)$	α	n	ϕ_m	m
M1	96.9	1.78	7.5	2	0.3	20%	2.5
M2	39.32	1.3	21.67	2	0.41	20%	2.5
M3	66.35	1.41	5.21	2	0.29	20%	2.5
M4	57.93	2.61	6.85	2	0.25	20%	2.2

TAB. 3. – Paramètres modèle de viscosité

En général, des valeurs d'énergie d'activation élevées indiquent que le matériau a une plus forte dépendance à la température sur son comportement d'écoulement. Le mélange M1 a l'énergie d'activation la plus élevée. Cela signifie que ce mélange est plus sensible aux changements de température et peut présenter des changements significatifs de viscosité ou d'autres propriétés rhéologiques avec des changements de température relativement faibles. Les mélanges avec additifs, et en particulier celui avec le SA, ont une énergie d'activation plus faible, comme le montre le tableau 3.

1.2.2. Indice d'imprimabilité

L'indice d'imprimabilité est calculé pour déterminer la capacité d'un composite à être imprimé en 3D à différentes températures voir équation 2.

$$\alpha_{stv} = \frac{1}{\eta_0} \frac{|n-1|}{E_a/R} \quad (\text{Eq. 2})$$

L'indice est calculé à 185°C, 190°C et 195°C. Les résultats sont présentés dans le tableau 4. Il faut noter que bien que les valeurs soient relativement proches, l'indice d'imprimabilité des mélanges à 195°C est plus élevé qu'à 185°C et 190°C à l'exception du mélange avec l'acide stéarique (M3). Cela indique que le processus d'impression 3D est plus approprié pour les mélanges M1, M3, M4 à 195°C. Pour le mélange avec l'acide stéarique, l'indice d'imprimabilité le plus élevé est à 185°C, ce qui pourrait s'expliquer par le fait que l'acide stéarique commence à se dégrader à 180°C[9].

Formulation	$\alpha_{stv} (10^{-9} K^{-1} Pa^{-1} s^{-1})$ T=195°C	α_{stv} (T=190°C)	α_{stv} (T=185°C)
M1	3.4	3.3	3.2
M2	9.5	12.8	13.5
M3	6.2	5.8	4.6
M4	4.1	3.21	2.8

TAB. 4. – Valeurs de l'indice d'imprimabilité pour les différentes formulations.

1.2.3. Microstructure et porosité

Les résultats de la tomographie ont montré que l'ajout de SA et de PEG comme additifs n'a pas eu d'influence significative sur le taux de porosité qui est entre 6 et 8% (voir tableau 5). Cependant, l'étude a révélé que la porosité est devenue plus localisée entre les couches qui ont été déposées (cf figure 4). Cela pourrait être attribué à l'interaction entre les couches, qui a conduit à la formation de vides. En

raison du refroidissement de la couche précédente, l'adhérence entre les deux couches est affaiblie, ce qui entraîne un taux plus élevé de porosité à l'interface. Cela pourrait avoir des conséquences sur la solidité et la durabilité des pièces imprimées. En revanche, l'ajout d'additifs a réduit les vides à l'intérieur des cordons, ce qui a permis d'obtenir une structure plus compacte. Les résultats suggèrent que si le taux de porosité global n'a pas été affecté par les additifs, leur présence a eu un impact significatif sur la structure interne du matériau.

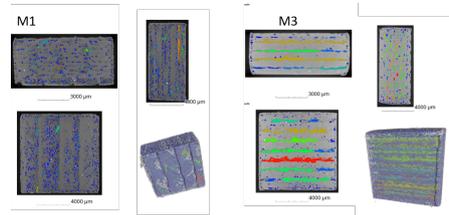


FIG. 4. – Tomographie de la porosité des échantillons M1 et M3

Mixture	Porosity
M1	6,3%
M2	8,2%
M3	7,1%
M4	7,5 %

TAB. 5. – Taux de porosités des éprouvettes par Tomographie

1.2.4. Résultats essais de traction

Les résultats des essais de traction sur les composites PLA-chanvre révèlent quelques conclusions intéressantes. Tout d'abord, il a été observé que l'inclusion du PEG dans le matériau conduisait à un comportement plus ductile. Cela signifie que le matériau présente une flexibilité accrue et qu'il est moins susceptible de se rompre. Fait remarquable, cette ductilité accrue n'a pas eu d'effets négatifs sur le module d'élasticité (E) et la résistance à la traction (σ) du matériau. En d'autres termes, les propriétés mécaniques n'ont pas été affectées malgré la ductilité accrue, voir tableau 6 et figure 5.

En revanche, l'introduction d'acide stéarique a eu un impact négatif sur les propriétés du biocomposite. L'inclusion de l'acide stéarique a entraîné une diminution des performances globales du matériau. Il convient de noter que la dégradation de l'acide stéarique commence à une température de 180°C, ce qui indique une limitation potentielle de l'application de cette formulation à des températures plus élevées. En comparant les propriétés des échantillons injectés à celles des échantillons imprimés, on

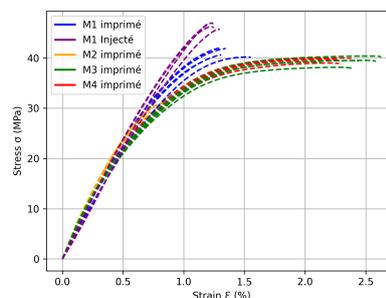


FIG. 5. – Courbes de traction des formulations M1 injecté vs M1, M2, M3 et M4 imprimées

a constaté que les échantillons injectés avaient un module d'Young similaire à celui des échantillons

imprimés. Toutefois, la limite d'élasticité des échantillons injectés était supérieure d'environ 15%. Cela suggère que le processus d'impression a permis d'obtenir des échantillons légèrement moins résistants, tout en maintenant un niveau de rigidité comparable.

Formulations	M1 injecté	M1	M2	M3	M4
E(GPa)	4,87 ± 0,5	4,92 ± 0,27	5,14 ± 0,11	4,85 ± 0,10	4,90 ± 0,09
σ (MPa)	47 ± 0,49	41 ± 1,17	30 ± 0,95	40 ± 0,48	40 ± 0,42
ϵ (%)	1,23 ± 0,02	1,3 ± 0,15	0,8 ± 0,05	2,4 ± 0,19	2,3 ± 0,09
ν	-	0,38 ± 0,02	0,42 ± 0,03	0,36 ± 0,02	0,36 ± 0,04

TAB. 6. – Propriétés mécaniques en traction

En outre, l'ajout d'additifs a entraîné une plus faible dispersion dans le matériau composite. Cela signifie que la distribution des additifs dans la matrice PLA-chanvre était plus uniforme, ce qui a permis d'améliorer la consistance et l'homogénéité. En outre, les composites PLA-chanvre avec additifs présentaient une plus grande précision dimensionnelle et un meilleur respect des spécifications souhaitées, voir tableau 7.

Epaisseur e=4mm	M1	M2	M3	M4
Epaisseur moyenne(mm)	4,51±0,3	4,01±0,1	4,03±0,3	4,15±0,15

TAB. 7. – Epaisseurs des éprouvettes

1.3. Conclusion

L'incorporation des additifs dans la formulation du composite a permis de réduire la viscosité, ce qui facilite l'impression et d'améliorer la précision dimensionnelle des pièces imprimées. Au terme de l'étude, on constate que l'ajout d'additifs influe sur le comportement du composite. Le taux de porosité est resté le même, toutefois sa présence est plus localisée avec les présence des additifs au niveau des interfaces entre les couches déposées. Les résultats des essais de traction effectués montrent que l'ajout du PEG confère un comportement plus ductile au matériau sans impacter la résistance en traction et la rigidité, contrairement à l'acide stéarique dont la présence résulte en une baisse de la contrainte et de la déformation à la rupture. Les deux variantes de PEG 1500 et 20000 présentent des performances comparables, démontrant des effets similaires sur les propriétés du matériau. Cela suggère que l'une ou l'autre variante peut être utilisée avec la même efficacité dans la formulation du composite.

Remerciements

Cette thèse ICE est financée par le Conseil Régional de Bourgogne Franche-Comté. Il s'agit d'un cursus intégrant une double compétence en recherche et en entrepreneuriat/gestion en vue de la création d'une entreprise/organisation basée sur des innovations de haute technologie à l'issue du travail de thèse.

Références

- [1] M. Y. Khalid, A. Al Rashid, Z. U. Arif, W. Ahmed, H. Arshad, A. A. Zaidi « Natural fiber reinforced composites : Sustainable materials for emerging applications », *Results in Engineering* Vol. 11, pp. 100263, 2021.
- [2] Antoine Le Duigou, David Correa, Masahito Ueda, Ryosuke Matsuzaki, Mickaël Castro « A review of 3D and 4D printing of natural fibre biocomposites », *Materials & Design* .
- [3] R. Arrigo, A. Frache « FDM Printability of PLA Based-Materials : The Key Role of the Rheological Behavior », *Polymers (Basel)* Vol. 14 n° 9, pp. 1754, 2022, ISSN 2073-4360.
- [4] X. Wang, M. Jiang, Z. Zhou, J. Gou, D. Hui « 3D printing of polymer matrix composites : A review and prospective », *Composites Part B : Engineering* Vol. 110, pp. 442–458, 2017, ISSN 1359-8368.
- [5] L. P. Muthe, K. Pickering, C. Gauss « A Review of 3D/4D Printing of Poly-Lactic Acid Composites with Bio-Derived Reinforcements », *Composites Part C : Open Access* Vol. 8, pp. 100271, 2022, ISSN 2666-6820.

- [6] S. Farah, D. G. Anderson, R. Langer « Physical and mechanical properties of PLA, and their functions in widespread applications — A comprehensive review », *Advanced Drug Delivery Reviews* Vol. 107, pp. 367–392, 2016, ISSN 0169-409X.
- [7] C. Gauss, K. L. Pickering, L. P. Muthe « The use of cellulose in bio-derived formulations for 3D/4D printing : A review », *Composites Part C : Open Access* Vol. 4, pp. 100113, 2021, ISSN 2666-6820.
- [8] J. Hidalgo, A. Jiménez-Morales, T. Barriere, J. C. Gelin, J. M. Torralba « Capillary rheology studies of INVAR 36 feedstocks for powder injection moulding », *Powder Technology* Vol. 273, pp. 1–7, 2015, ISSN 0032-5910.
- [9] K.-S. Jaw, C.-K. Hsu, J.-S. Lee « The Thermal Decomposition Behaviors of Stearic Acid, Paraffin Wax and Polyvinyl Butyral », *Thermochimica Acta - THERMOCHIM ACTA* Vol. 367, pp. 165–168, 2001.