



HAL
open science

Le recyclage des composites

Quentin Govignon, Florentin Berthet, Ludovic Moulin, Olivier Mantaux, A
Faure, Arnaud Gillet

► **To cite this version:**

Quentin Govignon, Florentin Berthet, Ludovic Moulin, Olivier Mantaux, A Faure, et al.. Le recyclage des composites. bulletin de l' AMAC, 2022, 38, pp.1-28. hal-03626168

HAL Id: hal-03626168

<https://imt-mines-albi.hal.science/hal-03626168v1>

Submitted on 1 Apr 2022

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.

Le Recyclage des composites

par *Quentin Govignon¹, Florentin Berthet¹, Ludovic Moulin², Olivier Mantaux³, Alexandre Faure³ et Arnaud Gillet³*

1 : Institut Clément Ader, Université de Toulouse, CNRS, IMT Mines Albi, INSA, ISAE-Supaéro, UPS, Campus Jarlard, F-81013 Albi

2 : Alpha Recyclage Composites, 4 rue Jules Védrières, 31400 Toulouse

3 : Université de Bordeaux, I2M-MPI, 15 rue Nadet, 33175 Gradignan

Des gisements variés

Les matériaux composites à matrice organique ont connu une forte croissance de leur utilisation ces dernières décennies. Dans la construction automobile et aéronautique, les réglementations imposant la réduction des émissions de gaz à effet de serre (GES) poussent les constructeurs à viser l'allègement des structures et cela passe par une utilisation grandissante des matériaux composites. On peut observer en Figure 1 l'augmentation de la part des composites en masse dans l'aéronautique [1]. Dans l'automobile, BMW a été précurseur dans l'utilisation de composites à fibres de carbone pour la fabrication de structures primaires sur des véhicules de série avec les i3 et i8 [2]. Néanmoins, l'impact environnemental des matériaux composites est loin d'être

négligeable. Les fibres de verre et de carbone consomment énormément d'énergie lors de leur production et les matrices sont en majeure partie issues de l'industrie pétrochimique. La combinaison de ces matrices, renforts et autres charges conduit à des matériaux complexes et souvent difficilement recyclables. Cette difficulté à recycler peut engendrer des scènes telles que l'enfouissement de centaines de pales d'éolienne (Figure 2) [3] qui impactent très négativement les efforts de réduction des GES.

L'intérêt des matériaux composites réside en partie dans le fait qu'ils sont réalisés à façon, pour adapter les propriétés aux besoins de l'ap-

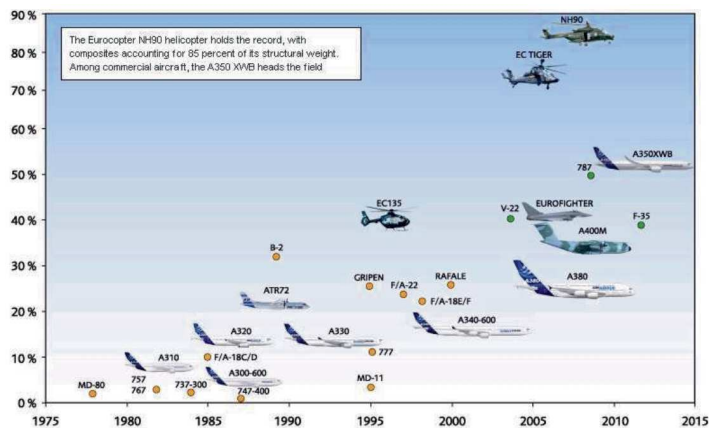


FIGURE 1: ÉVOLUTION DE L'UTILISATION DE COMPOSITES (EN MASSE) DANS L'AÉRONAUTIQUE [1]

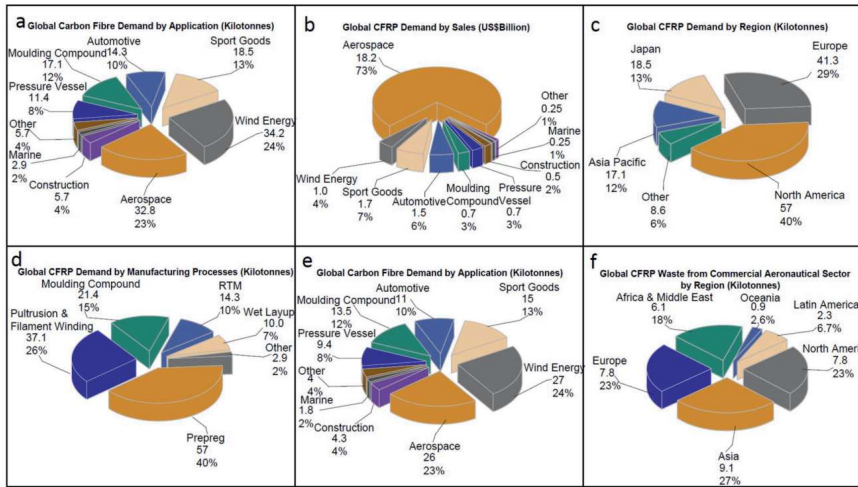


FIGURE 3: BESOINS MONDIAUX DE FIBRE DE CARBONE EN 2018 (A) PAR APPLICATION, (C) PAR RÉGION, (D) PAR PROCÉDÉ ; (B) VALEUR DU MARCHÉ DE LA FIBRE DE CARBONE PAR APPLICATION EN 2018 ; (E) CONSOMMATION MONDIALE DE FIBRE DE CARBONE EN 2020 PAR APPLICATION ; ET (F) ESTIMATION DU TONNAGE DE DÉCHETS DE COMPOSITES À FIBRE DE CARBONE ISSUS DU SECTEUR AÉRONAUTIQUE COMMERCIAL EN 2050 CLASSÉ PAR RÉGIONS. [13]

plication. Il y a donc une extrême diversité de matériaux ce qui en complique le recyclage par la diminution des volumes pour un matériau donné et le besoin d'adapter les solutions au cas par cas. L'utilisation grandissante des composites dans des applications structurales à échelle industrielle va entraîner une augmentation naturelle des gisements de matériaux composites à recycler. Pour ces gisements (aéronautique, éolien, infrastructure...) la localisation des déchets et leur constitution... est bien identifiée. Il sera alors aisé de mettre en place les filières de démantèlement et de collecte et les traitements pourront être adaptés.

Selon l'étude du JEC Observer [4], les traits suivants marquaient le marché des composites en 2019.

- Une production de 17,7 mégatonnes, tous types de matériaux confondus, estimée à plus de 90 milliards de dollars.
- En termes de pays et de zones géographiques, le marché est relativement concentré. La Chine (28 %) et l'Amérique du Nord (26 %) représentent à eux deux 54 % de la production, suivies de l'Europe (21 %) et du reste de l'Asie (19 %). À l'horizon 2024, ces rangs semblent se maintenir.

17,7
mégatonnes
produites chaque
année

9%
croissance
potentielle dans les
prochaines années

- Les résines thermodurcissables sont les plus utilisées (61 %) devant les résines thermostoplastiques (38 %).
- En masse, les fibres de verre sont de loin les renforts les plus utilisés (88 %) devant les fibres naturelles (11 %) et les fibres de carbone (1 %) ; [NDLR : Il faut toutefois noter qu'en valeur, les composites à fibre de carbone représentent un quart du marché.]
- Les principales industries utilisatrices sont, en volume, les transports (28 %), devant la construction (20 %), l'électronique et l'électrique (16 %) et les canalisations et réservoirs (15 %).

La mise à jour 2021 du JEC Observer [5], dresse un premier bilan des implications de la crise COVID avec une chute de 14% de la production mondiale en 2020. Le marché des composites a connu un fort rebond en 2021, excepté dans le

secteur aéronautique où le rebond n'est attendu qu'à partir de 2022, et devrait croître entre 2 et 9% par an selon les régions pour la période 2021-2025 (contre une croissance globale de 4% par an sur la période 2010-2019). Les moteurs de la croissance du marché des composites devraient être l'hydrogène et le recyclage.

La forte dynamique pour améliorer le recyclage et structurer les filières peut se voir dans l'augmentation régulière du nombre de publications sur le recyclage (Figure 4) [6]. Cette dynamique se retrouve au niveau national au cœur de la stratégie d'accélération « recyclabilité, recyclage et réincorporation des matériaux recyclés », un des marchés-clés retenus dans le cadre du pacte productif 2025 [7], ou dans des initiatives régionales comme l'appel à manifestation d'intérêt de la région Occitanie fin 2020 [8] et l'atelier « Matériaux composites et solutions durables :

de la conception à la fin de vie » organisé par l'Agence de Développement et d'Innovation de Nouvelle Aquitaine [9]. Même si les flux sont encore faibles, car les gisements de fort volume n'ont pas encore atteint leur fin de vie, et que les réglementations plus contraignantes ne sont pas encore en place, c'est dès maintenant qu'il faut s'organiser pour mettre au point les technologies et les filières afin d'être prêts et rentables le moment venu. Il restera un gros défi pour le traitement et

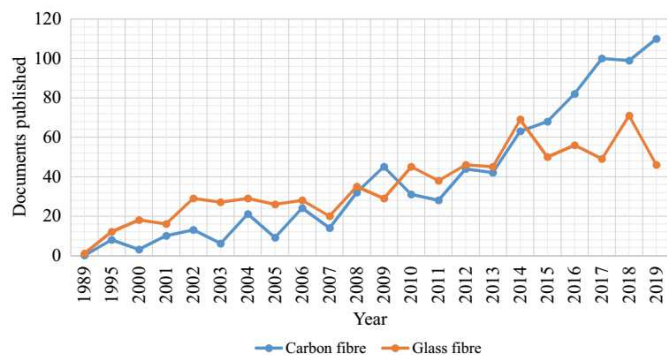


FIGURE 4: NOMBRE D'ARTICLES PUBLIÉS SUR LE RECYCLAGE DES COMPOSITES À FIBRE DE CARBONE ET FIBRE DE VERRE ENTRE 1989 ET 2019 [6]

la valorisation des déchets diffus, hétérogènes et mal connus mais, avec des technologies éprouvées, ces filières à faible tonnage pourront s'organiser pour être rentables.

La plus forte dynamique sur le recyclage des composites à fibre de carbone peut s'expliquer par une plus forte croissance des besoins en fibres de carbone mais surtout par le coût plus important, tant au niveau économique qu'énergétique, de la production de fibres vierges. Le marché de la fibre de carbone recyclée (rCF) est donc plus à même d'amortir les coûts de traitement pour rester économiquement viable face aux alternatives.

Il existe quelques projets de valorisation de composants en fin de vie, à base de pales d'éoliennes [10] (Figure 5) ou de composants d'avions [11,12] entre autres, mais dans la plupart des cas les matériaux auront besoin d'être transformés pour être réutilisés en tant que matière première. Outre les composants en fin de vie, d'autres sources de déchets sont aussi à prendre en compte et à valoriser (Figure 6). Selon leurs formes, différentes voies de valorisation peuvent être envisagées. Les fins de bobines de fils, fins de rouleaux de tissus et chutes de découpe de renforts secs peuvent être valorisées par une simple remise en forme des renforts



FIGURE 5: PROTOTYPE DE PASSERELLE PIÉTONNE UTILISANT UNE PALE D'ÉOLIENNE DÉCOMMISSIONNÉE POUR STRUCTURE PRIMAIRE, [10]

sans avoir besoin de traitement. Pour les préimprégnés, les fins de bobines et rouleau, les chutes de découpe et, dans le cas des préimprégnés therm durcissables, les rouleaux expirés car ayant atteint leur temps de stockage maximum ou n'ayant pas été conservés dans des conditions nominales, pourraient être réutilisés pour d'autres applications sans traitement pour séparer les fibres de la matrice ou bien passer par une phase de séparation et de valorisation des fibres. Enfin les chutes de découpe et d'usinage, les rebuts de production et les pièces en fin de vie demandent un traitement afin de pouvoir séparer et valoriser les différents constituants.

Méthodes de recyclage

Pyrolyse, solvolyse, vapo-thermolyse, recyclage mécanique : coûts, avantages et inconvénients, produits en sortie

L'un des défis posés par les matériaux composites renforcés de fibres est leur recyclage. En effet, la mise en décharge et la valorisation énergétique par incinération ont longtemps été les principales solutions en termes de gestion des déchets composites. La législation européenne en matière de déchets (directive 2008/98/CE) et l'impact environnemental de ces matériaux éliminés en décharge accentue l'urgence de trouver et de développer des solutions industrielles pour le recyclage et la valorisation de matière issue de déchets composites. Le recyclage des composites doit néanmoins faire face à de faibles volumes de déchets en fin de vie (comparativement à des filières déjà établies tels que les plastiques ou les aciers) associés à des coûts de collecte et de traitement qui restent relativement élevés [15]. Depuis plusieurs années, l'attractivité et la forte valeur ajoutée de la fibre de carbone sont les principales raisons qui poussent à l'émergence de nouvelles solutions visant spécifiquement la récupération du renfort. Ces solutions impliquent une séparation des constituants

du composite (matrice organique et renfort) tout en préservant les propriétés structurales du renfort.

Il existe plusieurs méthodes de recyclage (mécanique, chimique et thermique) mais toutes ne permettent pas la séparation des constituants [16,17]. Ces trois catégories de recyclage sont présentées ci-dessous.

Le recyclage mécanique par broyage, qui ne permet pas de séparer la fibre de la matrice, consiste à broyer le composite et à fractionner le broyat selon la longueur des fibres récupérées. En fonction de la longueur de fibre, les broyats et poudres peuvent alors être utilisés respectivement dans le génie civil ou incorporés dans des semi-produits thermodurcissables ou thermoplastiques. Le recyclage mécanique a été d'abord développé pour les composites à fibres de verre. Plusieurs études [16] sur les composites à fibres de carbone ont montré une perte significative de propriétés mécaniques de fibres et un coût énergétique trop important [18].

Deux grands procédés existent actuellement pour essayer de séparer la fibre de la résine : la solvolyse et la pyrolyse.

Le recyclage chimique par procédés solvolytiques [16,19] consiste en une décomposition chimique de la résine par un solvant réactif, généralement opérée dans des conditions super-critiques (haute température, haute pression). Il

existe plusieurs types de solvolyses, classées selon la nature du solvant utilisé (l'eau, un alcool, un glycol, un acide). Bien adaptés aux composites à fibres de carbone, ces procédés permettent la récupération d'une fraction liquide contenant les produits de dégradation et une fraction solide comprenant la fibre. La viabilité économique de la solvolyse doit encore être démontrée à l'échelle industrielle, les conditions supercritiques étant souvent difficiles à atteindre

et nécessitant des équipements lourds et onéreux.

Le recyclage thermique par pyrolyse ou thermolyse, consiste à décomposer thermiquement la matrice organique du composite dans une atmosphère inerte et dans une plage de température généralement comprise entre 400 et 800 °C selon la nature de la résine. La dégradation des déchets de composite produit une fraction solide comprenant les fibres et d'éventuels résidus

Composite Waste - Problem Statement



FIGURE 6: SOURCES DE DÉCHETS COMPOSITES DANS L'AÉRONAUTIQUE. [14]

carbonés (char) ainsi qu'une fraction gazeuse constituée d'une partie condensable et d'une autre non-condensable. Un traitement complémentaire oxydant est habituellement appliqué afin d'éliminer la part de résidus en surface des fibres. Le procédé de pyrolyse peut être réalisé avec différentes configurations de réacteurs (réacteur à lit fixe, four tournant, réacteur à lit fluidisé) et est déjà industrialisé par plusieurs sociétés pour la récupération et la valorisation de la fibre de carbone recyclée : ELG Carbon Fiber, CFK Valley Stade Recycling, Karborek.

La vapo-thermolyse est une variante de la pyrolyse qui utilise la vapeur d'eau surchauffée à pression atmosphérique. Comparativement à une pyrolyse conventionnelle, ce procédé thermo-chimique permet, sous des conditions spécifiques, d'améliorer le taux de conversion de la résine et de limiter le dépôt de résidus carbonés en surface des fibres [20,21]. La vapo-thermolyse est actuellement développée à l'échelle industrielle par la société Alpha Recycling Composites.

Effet sur les propriétés des fibres

Longueur rCF, dégradation, présence de char et caractérisation mécanique

La diminution importante de la longueur des fibres de carbone recyclées (rCF) est inhérente dans le cas du recyclage mécanique par broyage. En revanche, suite à un traitement thermique de pyrolyse ou de solvolyse, il est possible de récupérer des fibres de carbone de longueurs variables en fonction toutefois des dimensions de la pièce initiale à recycler et celles du réacteur utilisé. Par la suite, ces fibres de carbone subissent fréquemment une mise à dimension afin de faciliter leur utilisation dans des semi-produits à base de fibres discontinues destinés à l'industrie : mats, sheet/bulk molding compounds (SMC/BMC), injection et compression thermoplastique, etc.

Les procédés de solvolyse et de thermolyse sont très dépendants des conditions opératoires appliquées lors du traitement (et liées à la nature de la résine à dégrader). L'optimisation de ces conditions permet des taux élevés d'élimination de résine (> 99 %) et la récupération de fibres de carbone propres dont les propriétés mécaniques sont préservées [22,23]. La présence de résidus carbonés (char) formés lors de la dégradation de la résine est souvent observée sur la surface des fibres de carbone lors du traitement par pyrolyse. Il est donc nécessaire d'adapter le milieu réactionnel (vapo-thermolyse) ou d'ajouter une étape supplémentaire sous atmosphère oxydante afin de limiter et éliminer

ces résidus. Toutefois, si l'oxydation est excessive, les propriétés mécaniques des fibres peuvent être affectées.

Les performances des fibres de carbone issues de ces différents traitements doivent être évaluées. Les éventuelles modifications de surface des fibres recyclées peuvent être mises en évidence par une observation au microscope électronique à balayage (MEB). Il est alors possible de constater des irrégularités ou des endommagements de la surface des fibres ayant subi un traitement chimique ou thermique trop agressif. Les propriétés mécaniques des fibres de carbone recyclées sont généralement mesurées à l'aide du test de traction mono-filament selon la norme ISO 11566. Cependant, la configuration expérimentale de cette méthode exclut le test de populations importantes de fibres et par conséquent génère une grande variabilité dans les paramètres statistiques. Pour cette raison, un travail collaboratif initié entre l'Institut Clément Ader à Albi (ICA-A) et le laboratoire MATEIS de l'INSA Lyon [24,25] a permis de mettre en œuvre et développer un essai sur mèches de fibres de carbone (jusqu'à 6000 filaments). Cet essai, statistiquement représentatif, a notamment permis de montrer que la vapo-thermolyse est un procédé efficace conduisant à l'obtention de fibres dont l'intégrité mécanique est conservée.

Caractérisation mécanique sur mono-filament

Principe de la méthode (Figure 7)

Cet essai est encadré par la norme internationale ISO 11566 datant de 1996. Le principe est d'enregistrer la courbe force-déplacement d'un unique filament et d'en déduire la résistance ultime (maximale) en traction. La délicate sélection de fibres individuelles durant la préparation de l'essai est en partie responsable des larges dispersions obtenues. La fibre de carbone est naturellement très hétérogène. Avec une sélection restreinte de filaments, une large distribution de la taille des défauts est inévitable. La rupture

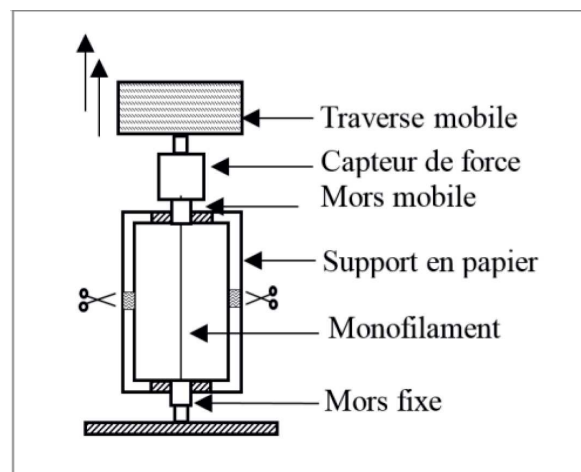


FIGURE 7 : SCHÉMA DE PRINCIPE DU TEST DE TRACTION MONO-FILAMENT. [13]

fragile de la fibre de carbone est amorcée par le défaut de plus grande taille de la fibre dans sa longueur utile. De ce fait, une grande distribution des résistances à la rupture est attendue, dépendant de la distribution de la largeur des défauts et de la distribution des diamètres des fibres. Un traitement statistique des données est utile. L'analyse de Weibull est une méthode largement répandue. Il est également possible d'utiliser une loi normale (moyenne, écart-type). L'intervalle de confiance de la moyenne d'une loi normale est donné par :

$$I_c = \left[\mu - 2.02 \frac{\sigma}{\sqrt{n}}; \mu + 2.02 \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \right]$$

Cet intervalle est donc très dépendant de la taille de l'échantillon (nombre de filaments testés). En alternative, l'essai sur mèche est mis en œuvre afin d'établir des distributions de référence pour chacune des fibres de l'étude.

Caractérisation mécanique sur mèches

Principe de la méthode

L'essai de traction sur mèches de carbone BTT (pour bundle tensile test) est également utilisé pour quantifier la résistance en traction des mono-filaments. L'essai sur mèche a été utilisé avec succès sur des fibres de verre [26,27], des

fibres de carbone [24,28] ainsi que des fibres céramiques [29]. Cet essai a été développé au laboratoire MATEIS de l'INSA de Lyon-Villeurbanne, notamment par M. R'Mili et J. Lamon [24,25]. Le traitement des résultats permet de déterminer la résistance en traction d'une fibre à partir de la courbe force-déformation d'une mèche contenant des milliers de fibres. L'essai est ainsi basé sur le fiber bundle model introduit par Coleman [30]. Il est fondé sur la rupture aléatoire et individuelle des fibres dans une mèche et met ainsi en jeu des lois statistiques. Cette approche statistique des données permet de s'affranchir de la majorité des problèmes fréquemment rencontrés dans l'essai de traction sur mono-filaments. Cette exploitation statistique de la courbe de traction permet de prendre en compte une grande population de mono-filaments (plusieurs milliers) et conduit à une estimation précise de la moyenne des propriétés à rupture en traction.

Mesure de la résistance moyenne de traction

Trois fibres de carbone AS4C, une neuve FN et deux recyclées selon deux cycles de traitement distincts FR400 et FR500 sont étudiées. La morphologie de surface de ces fibres est présentée en Figure 8. Cette étude permet d'établir

Echantillon	FV	FR400	FR500
Moyenne des résistances en traction (MPa)	3776	3272	3610
Minimum (MPa)	2936	2030	3013
Maximum (MPa)	4529	4438	5266
Ecart-type (MPa)	547	672	540
Intervalle de confiance à 95% (MPa)	[3776±174]	[3272±214]	[3610±172]

TABLEAU 1 : RÉSISTANCE À RUPTURE MOYENNES ISSUES DES ESSAIS SUR MONO-FILAMENTS ET PARAMÈTRES STATISTIQUES ASSOCIÉS (ÉCHANTILLON DE TAILLE 40)

Échantillon	FV	FR400	FR500
Moyenne des résistances en traction (MPa)	3864	3657	3852
Nombre de filaments testés	3240	3390	2940
Ecart-type (MPa)	573	437	591
Intervalle de confiance à 95% (MPa)	[3864±20]	[3657±15]	[3852±21]

TABLEAU 2 : ENSEMBLE DES PARAMÈTRES OBTENUS DES ESSAIS DE TRACTION SUR MÊCHES (ANALYSE PAR LOI NORMALE)

	Echantillon	FV	FR400	FR500
Essais mono-filament	Module de Weibull	8,37	5,76	7,85
	Facteur d'échelle σ_0 (MPa)	4001	3535	3837
Essais sur mèche	Module de Weibull	8,1	9,8	7,8
	Facteur d'échelle σ_0 (MPa)	4082	3841	4090

TABLEAU 3 : PARAMÈTRES DE WEIBULL OBTENUS

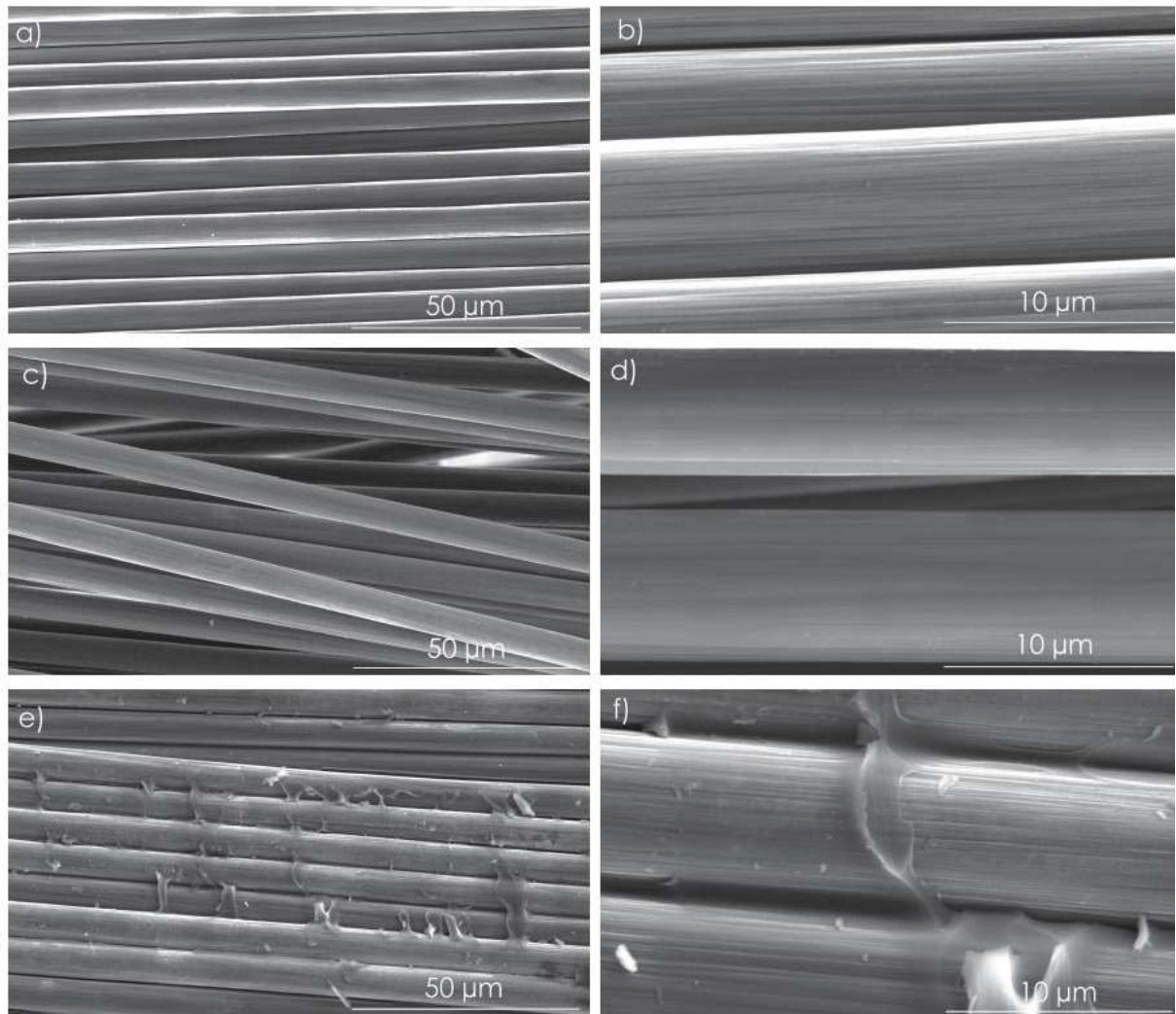


FIGURE 8 : ANALYSE MICROSCOPIQUE DE L'ÉTAT DE SURFACE DES FIBRES FV (A ET B), FR500 (C ET D) ET FR400 (E ET F) AUX GROSSISSEMENTS X1000 ET X5000 [22]

un comparatif entre les propriétés mécaniques des filaments recyclés et des filaments d'origine. L'ensemble des résultats est exprimé sous forme d'une moyenne des résistances en traction et de son intervalle de confiance à 95% correspondant dans le Tableau 2 et la Figure 9.

Les trois fibres présentent des paramètres sensiblement différents, avec une résistance moyenne variant de 3272 MPa à 3776 MPa pour les essais sur mono-filaments et de 3657 à 3864 MPa pour les essais sur mèche. La fibre vierge (VF) et la fibre issue d'une vapo-thermolyse à 500°C (FR500) sont très semblables. Leur résistance en traction est quasi-similaire. L'écart-type sur la moyenne de la résistance en traction

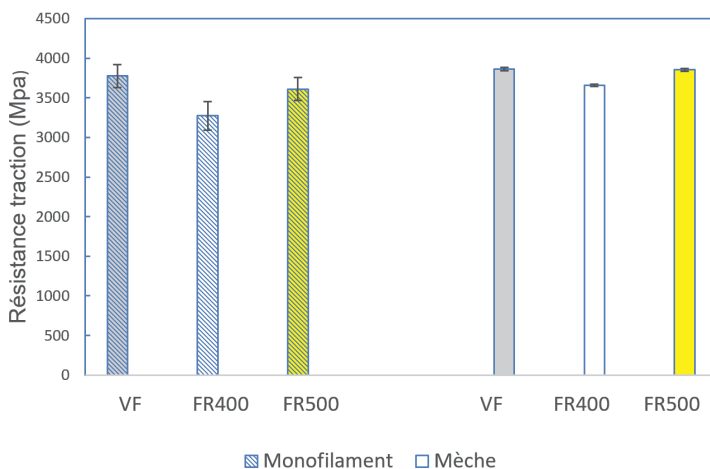


FIGURE 9: RÉSISTANCE EN TRACTION MOYENNE (ESSAI MONO-FILAMENT ET ESSAI SUR MÈCHE) VF, FR400 ET FR500 ET INTERVALLE DE CONFIANCE ASSOCIÉS [22]

est également très proche.

En revanche, la fibre FR400 affiche une résistance en traction inférieure d'environ 10% ainsi qu'un écart-type supérieur aux deux autres fibres pour l'essai mono-filament. En effet, la fibre FR400 n'est pas totalement propre en surface : environ 5% en masse de résine n'a pas été éliminée au cours du traitement de vapo-thermolyse du composite à 400°C. Ainsi, les nodules de résine subsistant à la surface de la fibre contribuent à une rupture prématurée du filament, avant que la résistance en traction intrinsèque du filament n'ait été réellement atteinte. De même, les écart-types supérieurs mènent à penser que la rupture se fait de façon moins homogène sur l'échantillon dans son ensemble, laissant plus de place aux phénomènes aléatoires engendrés par la présence de résine en surface de la fibre.

Analyse de Weibull

L'analyse de Weibull [23,31] est spécialement dédiée aux matériaux dont la rupture est conditionnée par la présence de défauts en surface, au niveau desquels la concentration de contraintes induit une propagation de fissure. C'est le cas de la fibre de

carbone. Cette loi statistique est connue sous le nom de « loi du maillon (le plus) faible ». Des aspects statistiques liés à la distribution de la taille des défauts sont ainsi mis en jeu. Les résultats sont exprimés sous forme d'un facteur d'échelle σ_0 et d'un module de Weibull m . Ce facteur d'échelle transcrit la contrainte moyenne d'activation des fissures amenant à la rupture du matériau. Le module de Weibull, lui, est caractéristique du regroupement des défauts pour un matériau donné. Plus il est grand, plus les défauts sont homogènes.

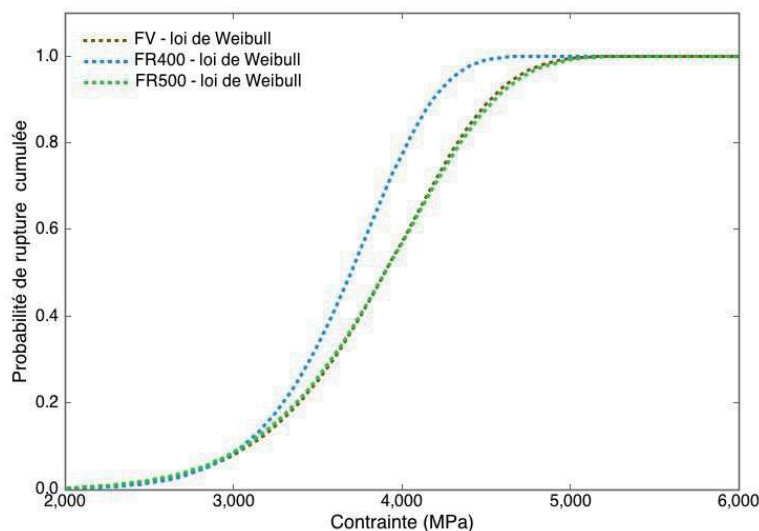


FIGURE 10 : ANALYSE DE WEIBULL - PROBABILITÉ CUMULÉE DE RUPTURE EN TRACTION DES FILAMENTS DES ÉCHANTILLONS TESTÉS LORS DE L'ESSAI SUR MÈCHES

Dans le modèle de Weibull, la fibre est supposée être constituée de maillons ayant chacun leur propre résistance à rupture. La fracture de la fibre intervient donc quand le maillon le plus faible se rompt. Pour chaque maillon, il existe une probabilité de rupture. La loi de Weibull y associe une densité de probabilité. En supposant que la contrainte dans la fibre est uniforme, une loi de Weibull à deux paramètres s'écrit dans le cas de la traction :

$$P(\sigma) = 1 - e^{-\frac{V}{V_0} \left(\frac{\sigma}{\sigma_0}\right)^m}$$

Les résultats de l'analyse sont regroupés dans le Tableau 3.

Pour les essais sur mono-filament, l'évolution du facteur d'échelle σ_0 est identique à l'évolution des résistances moyennes en traction. De même, l'évolution du module de Weibull m est en accord avec les écart-types. Plus le module de Weibull est petit, plus la dispersion est élevée. On retrouve bien le module de Weibull de la fibre FR400 inférieur à celui des fibres FV et FR500, ce qui traduit la plus grande dispersion des propriétés de la fibre FR400. Ces propos soulignent également le fait que la fibre FR500 est relativement semblable à la fibre FV

en termes de répartition des défauts. Les états de surface des deux fibres semblent relativement proches. A ce niveau de l'analyse, une distribution de Weibull donne donc lieu aux mêmes interprétations qu'une analyse basée sur une loi normale. Cependant, l'objectif premier, qui est la validation de l'intégrité mécanique des fibres recyclées, se mène à une échelle comparative.

L'analyse des essais sur mèche est en bon accord avec l'analyse faite par une loi de probabilité normale. La pente plus abrupte de la loi de probabilité de la fibre FR400 confirme un écart-type plus faible pour cette fibre. Et en effet, le

module de Weibull est bien le plus élevé des trois pour cette fibre dans le cas de l'essai sur mèches. En revanche, la probabilité de rupture maximale est atteinte plus tôt, indiquant que la résistance en traction de la fibre FR400 est moins grande que celle des deux autres fibres. Sur ce point, les fibres FR500 et FV sont très proches l'une de l'autre puisque la probabilité de rupture maximale est atteinte au même niveau de contrainte. De même, les pentes sont similaires. La possibilité de conservation des propriétés mécaniques de la fibre (FR500 issue d'un traitement de composite par vapo-thermo-

lyse) est donc confirmée. Les propriétés inférieures des fibres FR400 sont liées à la présence de résidus à la surface des fibres traitées.

Limitations : Plus le nombre de filaments dans la mèche est grand, plus il est difficile d'éviter les phénomènes de friction et donc d'obtenir des courbes exploitables. Mais en même temps, plus le nombre de filaments testés est grand, plus l'intervalle de confiance sur la moyenne diminue.

En étudiant la qualité du transfert de charge de la fibre recyclée vers une matrice polyamide PA-6 par essai de fragmentation, la fibre référence (la fibre vierge) présente une meilleure

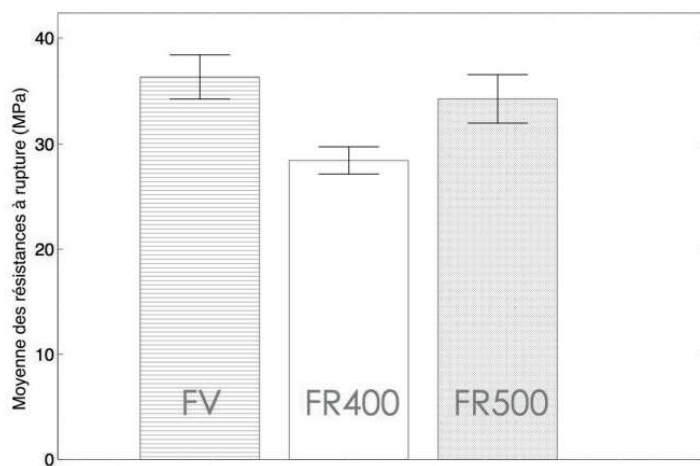


FIGURE 11: CONTRAINTES DE CISAILLEMENT INTERFACIALES DES ÉCHANTILLONS FC/PA6 ET ÉCART-TYPES CORRESPONDANTS

adhésion interfaciale. Pour la fibre FR500 la baisse de contrainte de cisaillement interfaciale n'est que de 6% par rapport à la fibre vierge. Pour la fibre FR400 la baisse de contrainte de cisaillement interfaciale est de 21% par rapport à la fibre vierge. Les propriétés sont donc soit conservées, soit partiellement abaissées.

Autres mesures

Des tests de fragmentation et d'arrachement direct (pull-out) [22,32] sont également utilisés pour caractériser la qualité du transfert de charge de ces fibres de carbone recyclées. Ces tests peuvent être éventuellement complétés par des analyses de mouillabilité des fibres de carbone recyclées à l'aide d'équipements de type tensiomètre de surface [33].

Utilisation de fibres de carbone discontinues dans l'industrie

Une opportunité pour utiliser du rCF plutôt que de la fibre vierge

L'industrie utilise des fibres de carbone discontinues dans :

- les mats,
- le Carbone Forgé®,
- l'impression 3D,
- les SMC et BMC,
- les thermoplastiques renforcés estampables (TRE),
- l'injection et la compression thermoplastique, etc.

L'industrie automobile, pour faire face à des exigences d'allègement, se tourne parfois vers la fibre de carbone, aussi bien pour la carrosserie que pour des éléments de structure. Par exemple, BMW dans ses i3 et i8, utilise largement la fibre de carbone et également les rCF, provenant de chutes de découpe des préformes, sous forme de mats cousus, notamment dans des panneaux de toits et des éléments de structure (coque) de sièges arrière utilisant une résine polyuréthane.

Les mats de carbone peuvent être également utilisés comme complexe de drainage dans les composites infusés, ou comme voile de surface pour limiter l'empreinte des renforts tissés.

D'autre part, GMC a utilisé la fibre de carbone coupée dans sa plateforme de pick-up Carbonpro du Sierra Denali, avec Continental Structural Plastics (CSP) et sa technologie Serrebo™ utilisant une matrice polyamide.

Le procédé Carbone Forgé®, breveté par la société Duqueine, a de nombreuses applications

industrielles comme des moyeux tripales, des éléments de sécurité pour pilote, etc.

Lamborghini utilise le procédé Carbone Forgé® (composite forgé) sur bon nombre de pièces de ses voitures (bras de suspension, capots de cadrans, coques de sièges, en allant jusqu'à des éléments de club de golf).

Un procédé similaire, intitulé PIMOC, a été breveté par la société Equip Aero Technique.

Une technologie proche est utilisée dans la réalisation de boîtiers de montres de luxe (Audemars et Piguet).

L'impression 3D utilise également des fils contenant de la fibre de carbone, ce qui permet d'imprimer des géométries très complexes dans un matériau performant.

L'injection thermoplastique, enfin, a elle aussi recours à des fibres de carbone de taille réduite (de l'ordre du dixième de mm).

Tous les procédés qui utilisent de la fibre de carbone sous forme discontinue (Figure 12) sont

autant d'opportunités d'utilisation pour les fibres recyclées en alternative aux fibres vierges, puisque les fibres sont de toute façon déjà coupées lors du recyclage. Certains d'entre eux, nous l'avons vu, ont d'ailleurs déjà recours à la fibre de carbone recyclée.

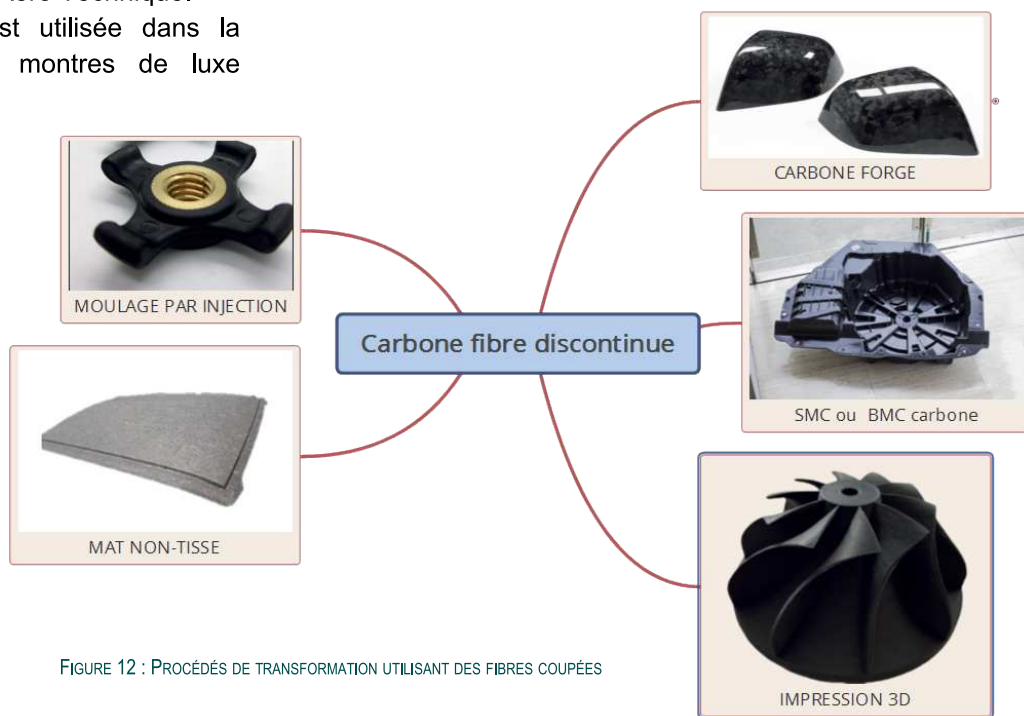


FIGURE 12 : PROCÉDÉS DE TRANSFORMATION UTILISANT DES FIBRES COUPÉES

Challenges pour remplacer les fibres de carbone vierge discontinues

Désensimage et ré-ensimage, variabilité des longueurs et des grades de fibres

Les fibres de carbone sont en général ensimées pendant l'étape de filage pour améliorer la compatibilité de la fibre avec la résine, puis lors des étapes de traitement textile de bobinage et de tissage afin de limiter l'endommagement des fibres pendant les divers procédés. Les traitements de séparation de la fibre d'avec la matrice lors des phases de recyclage par pyrolyse ou solvolysse ont tendance à éliminer cet ensimage. L'utilisation de la fibre recyclée pour l'obtention de filés ou de textiles peut nécessiter une phase d'ensimage afin de ne pas endommager les fibres lors des phases de cardage, de filage et de tissage. L'absence d'ensimage peut conduire à des ruptures de fibres et une perte de matière lors des différentes phases de travail [32,34]. Alors que l'ensimage sur la fibre vierge peut se faire aisément sur des fibres continues sur une filière, la problématique devient toute autre avec

des fibres discontinues et dispersées. L'ensimage des fibres permet aussi d'améliorer la mouillabilité des fibres avec la résine [33], l'absence d'ensimage peut donc être source de problèmes d'écoulement résultant en une augmentation des porosités et une diminution des propriétés mécaniques. Il est donc important de développer des technologies d'ensimage adaptées à des fibres discontinues.

Comparées à de la fibre vierge et continue qui peut être aisément coupée à une longueur calibrée, les fibres recyclées présenteront une plus grande dispersion de longueur de fibres. Les fibres de carbone recyclées, de par les processus de recyclage (casse de fibre), présentent également des longueurs variables, avec là aussi une incidence potentielle sur les propriétés mécaniques.

Les fibres de carbone recyclées peuvent par nature provenir d'origines diverses, avec à la clé une diversité de références de fibres de carbone (fibres haut module, module intermédiaire, haute résistance), et aussi une diversité de propriétés mécaniques, nous le verrons plus loin. La prise en compte de ces variabilités est un challenge pour la prédiction des propriétés obtenues. A titre d'exemple, pour les propriétés de déformation à rupture d'un mat de carbone constitué de trois fibres (T300, T700 et IM7) de trois longueurs (50-80-110mm) [34], la Figure 13 com-

pare les déformation sens travers (CD cross direction) expérimentales (à gauche) et prédites avec un modèle linéaire (à droite). On peut y voir la variabilité de la déformation à rupture en fonction de la composition du mat.

Semi-produits à base de fibres de carbone recyclées

Mats, réalignement de bandes, fils rCF, tissus ou non-tissés architecturés

Il a été montré dans les chapitres précédents que le recyclage de fibres de carbone courtes

était possible pour réaliser des pièces en polymère thermoplastique injecté renforcé de fibres de carbone. Afin de pouvoir exploiter les excellentes propriétés des fibres de carbone recyclées dans des matériaux composites à matrice thermodurcissable, il est nécessaire de disposer d'un catalogue de semi-produits. Ainsi plusieurs industriels et auteurs élaborent des semi-produits à base de fibres de carbone recyclées [35,36]. La liste présentée ci-après ne se veut pas exhaustive mais plutôt une illustration de la variété des produits existants.

Mats

Le semi-produit le plus simple à réaliser est le mat ; C'est un semi-produit couramment utilisé

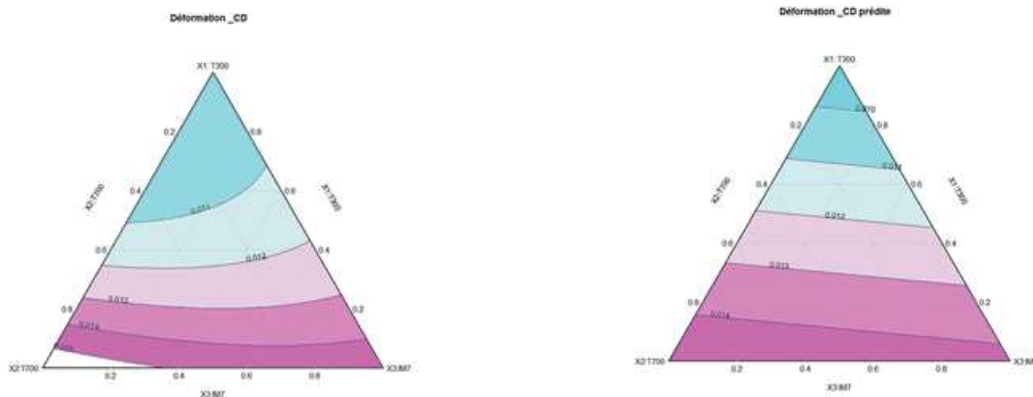


FIGURE 13 : DÉFORMATION À RUPTURE D'UN MAT MÉLANGE DE TROIS NATURES DE FIBRES DE CARBONE

qui présente l'avantage de pouvoir épouser des formes courbes complexes. Les mats de fibres de carbone recyclées peuvent être réalisés avec différentes techniques, y compris dérivées des techniques papetières [37,38]. La technique FORMAX [39], permet de convertir des déchets de fibres vierges provenant de sa fabrication de non-tissés continus en une feuille non-tissée de fibres discontinues. Cela permet une bonne formabilité pour les pièces à géométrie complexe réalisées ensuite par SMC (sheet molding compound). Les mats secs peuvent être utilisés en moulage au contact, infusion, RTM (resin transfer molding), SMC, etc. Les Produits CarbisoM® d'ELG [40,41] sont assez représentatifs de ce type de semi-produits.

Plus simplement, il est possible d'utiliser directement des déchets de découpe de tissus broyés en mélange avec de la résine pour réaliser un composite par BMC (bulk molding compound) [42]. Ces semi-produits peuvent être mis en œuvre avec des matrices thermoplastiques ou thermodurcissables. Avec une résine thermoplastique, les taux de fibres restent en deçà de 30%. Il est à noter également l'initiative de Vartega [43] d'utiliser des fibres de carbone récupérées et recyclées dans des fils d'impression 3D pour applications automobiles et industrielles.

Non-tissés et architectures réalignées

Procédés industriels

Dans l'optique d'obtenir une plus grande maîtrise de l'architecture fibreuse, plusieurs techniques d'alignement partiel des rCF ont été étudiées [35,44]. La technique la plus utilisée à l'échelle industrielle est le cardage, puisque cette technique est couramment utilisée dans le domaine textile. A titre d'exemple, ELG met sur le marché les semi-produits CarbisoCT® [41] depuis 2018.

Cadrage et comélage

De nombreux chercheurs profitent de la mise en forme des fibres recyclées pour insérer une matrice thermoplastique [34,45]. La société SigmaTex [46] met sur le marché des semi-produits développés lors du programme de développement FiberCycle financé par le gouvernement britannique. L'objectif était de combiner les déchets de production de fibres de carbone sèches de 45 à 60 mm de long avec un thermoplastique (PA PES ou PEI) et ensuite de réaliser des bandes ou du non-tissé biaxial ± 45 de 220 g/m². Ces semi-produits sont utilisables pour mouler à la presse des composants automobiles.

Bandes continues de fibres alignées, fils et rubans co-mêlés

Le projet Européen FP7 CORDIS [47] consiste à convertir des rubans de fibres recyclées cardées en bandes continues étirées puis consolidées à l'aide d'un polymère PA66. Différents types de rubans avec différentes densités surfaciques ont été produits pour des applications composites thermoplastiques ou thermodurcissables avec différents taux de fibres de carbone. Des rubans larges ont été utilisés pour la production de non-tissés biaxiaux $\pm 45^\circ$ de 400 ± 10 g/m². La société Tilsatec fournit des rubans 60/40 CF/PET et étudie leur transformation sur métiers à tisser. Ces matériaux sont ensuite destinés à être mis en forme par compression à chaud. Les matériaux obtenus présentent des taux de fibres pouvant atteindre 50% avec des résines thermoplastiques (PA66).

Le projet HiPerDiF de Bristol University [48,49] a permis la mise au point d'un procédé hydraulique d'alignement de fibres recyclées très courtes (1 à 3 mm) en suspension liquide par projection à travers des plaques percées. Les fibres présentent alors un excellent alignement. Le procédé ne fonctionne actuellement qu'à une échelle laboratoire.

Les chercheurs de l'Institut für Verbundwerkstoffe [44] et de Fraunhofer IGCV [38] ont

adapté le cardage des fibres de carbone recyclées et réalisent des bandes UD pré-enduites dans l'optique de procéder ensuite à de la dépose automatisée. Ils réalisent également du fil par comêlage de fibres recyclées cardées en mélange avec des fibres thermoplastiques (PA6).

Le projet Manifica s'appuie sur la technologie brevetée I2M [50] de l'Université de Bordeaux pour réaligner des fibres de carbone recyclées. Il s'agit de transformer des morceaux de tissus de carbone post-thermolyse (ou des chutes de découpes sèches) en bandes de fibres UD (unidirectionnelles) discontinues. Le procédé a été conçu pour ne pas casser les fibres de carbone et permet de réaligner 90% des fibres en conservant leur longueur (comprise entre 50 et 250 mm). Les bandes sont consolidées avec 2% de poudre thermoplastique et peuvent être assemblées en préformes unidirectionnelles ou bidirectionnelles de type NCF. Des composites thermoplastiques peuvent être réalisés avec ces préformes par compression à chaud et présentent des taux de fibres de 50% à 55%. Les composites à matrice thermodurcissable imprégnés par infusion, RTM ou thermocompression présentent des taux de fibres de 55% à 65%.

Les chercheurs de Technische Universität Dresden [51–54] ont adapté et développé les techniques textiles de friction-spinning pour réaliser

des fils hybrides de fibres de carbone et de fils thermoplastiques (PA6). Ils se basent principalement sur des chutes de découpes sèches de fibres de carbone. Les fils hybrides réalisés contiennent de 20 à 40% de rCF.

Propriétés mécaniques des composites 2.0

Que peut-on attendre comme propriétés mécaniques des matériaux composites à fibres de carbone recyclées ?

Il a été montré que la forme donnée à la rCF (longueur, architecture) avait une grande influence sur les propriétés des matériaux composites de 2e génération [55,56]. La maîtrise de la forme des rCF permet alors de proposer des applications intéressantes pour les composites à fibres recyclées [57]. La maîtrise de l'architecture fibreuse permet de mettre à profit les excellentes propriétés de la rCF, par plusieurs voies.

- La rCF présentant une forte anisotropie [58] (rapport de l'ordre de 10 entre propriétés longitudinales et transverses) l'alignement des fibres recyclées dans le sens des efforts apporte une grande amélioration possible des propriétés et notamment du module d'Young [59,60].
- Les composites à fibres recyclées sont des composites à fibres discontinues, dans lesquels

le transfert de charge fibre/matrice joue un rôle beaucoup plus important que dans les composites à fibres continues ; c'est pourquoi la longueur des fibres est un paramètre important à contrôler [61].

- Enfin la maîtrise de ces deux paramètres combinés permet de réaliser des préformes fibreuses beaucoup plus denses et maximise ainsi la fraction volumique de fibres dans les composites de 2° génération.

Composites à matrice thermodurcissable

La mise en œuvre de composites par SMC « direct » de chutes de « patches » carrés fibres de carbone malaxées en mélange avec une résine thermodurcissable [42] est une technique très simple. Il est également possible de compacter des pellets de pré-imprégnés broyés [59]. Les propriétés obtenues sont alors relativement faibles. La résistance est comprise entre 75 et 100 MPa avec un module d'Young de 25 à 30 GPa (les taux de fibres obtenus ne sont pas précisés).

L'institut Fraunhofer IGCV d'Augsburg (Allemagne) [38] a étudié la mise en œuvre de semi-produits non-tissés à base de rCF. Ces semi-produits sont cardés, donc partiellement alignés, de 150 à 250 g/m². La comparaison porte sur les

procédés de production de composites par presse chauffante et par moulage par transfert de résine (RTM). Ces auteurs montrent la possibilité d'obtenir des taux de fibres de 15% à 45%. Toutefois en pratique, ils obtiennent des taux de fibres de l'ordre de 20% avec une matrice epoxy. Les résistances à rupture en traction obtenues vont de 67 à 121 MPa et les modules d'élasticité sont de l'ordre de 9 à 17 GPa.

Les matériaux du projet CORDIS [47] sont des composites non-tissés bi-axiaux (partiellement alignés par cardage) avec une matrice epoxy. Les fractions volumiques des rCF étaient de 28% dans les stratifiés carbone/aramide/époxy et de 20% dans les autres stratifiés non-tissés/époxy. La résistance à la traction est comprise entre 225 et 240 MPa. Le module de traction est compris entre 15,5 et 19,5 GPa.

Forme des fibres recyclées	Taux de fibres (%)	Résistance (MPa)	Module d'Young (GPa)
Mélange direct + SMC	20	240	20
Mat	30	217	18
Non-tissé	35	350	32
Alignement partiel	50	620	85
Cardage	60	600	82
Bandes UD	65	750	110
<u>HiPerDiF</u>	46	800	80

TABLEAU 4 : PROPRIÉTÉS DES COMPOSITES À FIBRES DE CARBONE RECYCLÉES ET MATRICE THERMURCISABLE

Les travaux de Pickering [35] à l'Université de Nottingham (UK) ont abouti à un procédé d'alignement de fibres courtes (3 à 12 mm) intéressant. Il est alors possible d'obtenir des composites de 46% à 60 % de fraction volumique de fibres grâce à des pressions allant de 7 à 100 bars. La résistance à la traction est comprise entre 400 et 620 MPa. Le module de traction est compris entre 70 et 85 GPa.

Ceci démontre le potentiel d'applications à haute valeur ajoutée pour les fibres de carbone recyclées avec un alignement des fibres.

Des propriétés mécaniques très intéressantes peuvent être obtenues avec une matrice époxy grâce à un fort alignement des fibres recyclées [62]. Les travaux de l'Université de Bordeaux [63] génère des bandes de fibres de carbones UD permettant de réaliser des composites présentant un taux de fibres de

l'ordre de 65%. Les résistances mécaniques des composites vont de 500 à 750 MPa et les modules d'Young de 110 GPa sont très proches des modules d'Young obtenus avec des fibres de carbone vierges et continues. Le projet HiPerDiF [64] est un procédé en développement permettant un très bon alignement de fibres de carbone recy-

clées courtes (de l'ordre du mm). Il permet de réaliser des composites présentant des taux de fibres de l'ordre de 46% avec une résistance de 800 MPa.

Le Tableau 4 récapitule les propriétés des composites à fibres de carbone recyclées et matrice thermodurcissable en fonction des technologies de remise en forme des fibres.

Composites à matrice thermoplastique

Il existe 2 méthodes principales pour mettre en œuvre des composites thermoplastiques à fibres recyclées, soit l'injection [65], soit l'association des fibres recyclées avec des fibres thermoplastiques par des méthodes textiles [66]. Les fibres de carbone recyclées courtes injectées en mélange avec une matrice polyamide 6,6 présentent des taux de fibres généralement en deçà de 30% et sans alignement réellement maîtrisé. Les résistances à rupture en traction obtenues s'étalent alors de 70 à 210 MPa [43].

Les composites thermoplastiques réalisés avec des architectures fibreuses mixtes fibres recyclées/fibres thermoplastiques présentent

généralement des taux de fibres de 20% à 30% [34].

Avec une matrice thermoplastique, d'excellentes propriétés mécaniques sont obtenues en utilisant des architectures fibreuses mixant fibres recyclées et fibres textiles [44,45] ; ainsi que par le projet HiPerDiF [49] qui permet également de réaliser des composites à matrice thermoplastique d'excellente résistance. Les meilleures performances en termes de résistance sont obtenues par l'équipe de TU Dresden [52] par thermocompression d'un filé comelé : avec un taux de fibres de 35 à 49% (avec du PA6), les modules d'Young peuvent atteindre 90 GPa et les résistances s'étendent de 680 à 1030 MPa.

Le Tableau 5 récapitule les propriétés des composites à fibres de carbone recyclées et matrice thermoplastique en fonction des technologies de remise en forme des fibres.

Les performances spécifiques des différents composites à fibres de carbone recyclées sont regroupées dans la Figure 14.

Forme des fibres recyclées	Taux de fibres (%)	Résistance (MPa)	Module d'Young (GPa)
Injection fibres courtes	28	173,6	14,4
Cardage	35	353,9	34,2
Friction spin	42	738,9	58,82
<u>HiPerDiF</u>	28	536,3	46,3

TABEAU 5 : PROPRIÉTÉS DES COMPOSITES À FIBRES DE CARBONE RECYCLÉES ET MATRIE THERMOPLASTIQUE

Conclusion

Nous ne sommes qu'au début de l'usage des composites à une échelle industrielle qui permette d'envisager des gisements de matériaux à recycler homogènes en qualité et en quantité suffisante. Comme pour les autres matériaux industriels tels que le bois ou le métal, il est nécessaire de structurer les filières et trouver

des débouchés pour les chutes de productions et les matériaux en fin de vie. Les technologies de séparation et de récupération des fibres arrivent à une maturité permettant de traiter de grandes quantités de matériaux avec un impact minimal sur les fibres. L'augmentation des volumes de matériaux et des taux de récupération des fibres permettent d'envisager la viabilité économique du recyclage [67], même si l'incita-

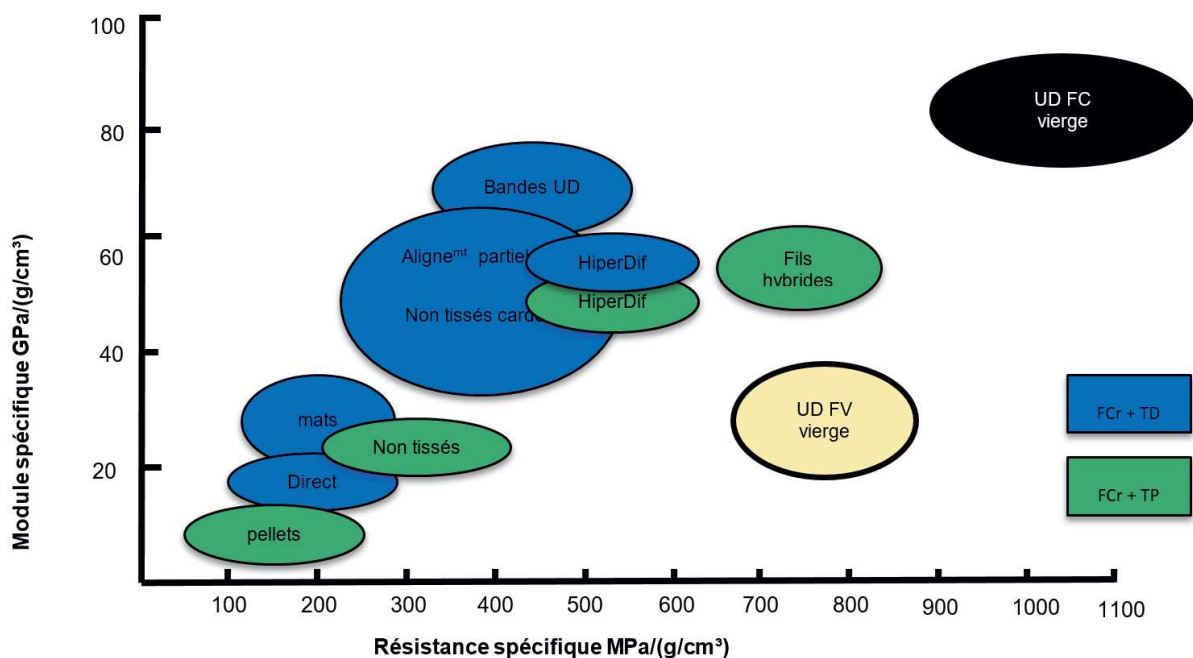


FIGURE 14 : COMPARAISON DES PROPRIÉTÉS SPÉCIFIQUES DES COMPOSITES À FIBRES DE CARBONE RECYCLÉES

tion législative et l'augmentation des coûts de mise en décharge ou d'incinération restent un moteur nécessaire. Il subsiste encore des interrogations sur l'effet du traitement des composites avec des matériaux multicouches, la présence de charges et additifs, des revêtements et des inserts. La valorisation autre qu'énergétique des résidus de résine reste encore largement à explorer [68], cette valorisation peut aussi se faire à la source par le développement de résines thermodurcissables vitrimères [69] ou de matrices thermoplastiques dépolymérisables.

La valorisation des fibres recyclées est possible pour des applications non structurales ou en hybridation. Le coût des fibres de carbone recyclées comparé à des matériaux vierge peut en faire une alternative viable économiquement, mais il reste du travail de démonstration et d'utilisation pour en augmenter l'acceptabilité chez les utilisateurs [70]. Bien que les propriétés des fibres recyclées soient quasiment équivalente à celles des fibres vierges tant au niveau du module que de la ténacité à l'échelle de la fibre individuelle, l'utilisation des fibres recyclées dans des applications structurelles requiert encore des développements sur les méthodes d'ensimage et de technologies textiles afin de pouvoir proposer des renforts textiles à fibres longues et architecturées.

Références

- [1] Njionhou Kepnang A. Contribution à l'étude des variabilités des propriétés des stratifiés fabriqués par infusion de résine liquide. These de doctorat. Toulouse 3, 2011.
- [2] BMW Leipzig: The epicenter of i3 production n.d. <https://www.compositesworld.com/articles/bmw-leipzig-the-epicenter-of-i3-production-> (accessed May 5, 2021).
- [3] Griffith K. Hundreds of fiberglass wind turbine blades pile up in landfills. Mail Online 2020. <https://www.daily-mail.co.uk/news/article-8294057/Hundreds-non-recyclable-fiberglass-wind-turbine-blades-pictured-piling-landfills.html> (accessed May 3, 2021).
- [4] JEC. JEC Observer: Overview of the Global Composites Market 2019-2024 2020.
- [5] JEC. JEC Observer: Current trends in the global composites industry 2020-2025 2021.
- [6] Karuppannan Gopalraj S, Kärki T. A review on the recycling of waste carbon fibre/glass fibre-reinforced composites: fibre recovery, properties and life-cycle analysis. SN Appl Sci 2020;2:433. <https://doi.org/10.1007/s42452-020-2195-4>.
- [7] Stratégie d'accélération recyclabilité, recyclage, réincorporation des matériaux recyclés. Ministère Transit Écologique n.d. <https://www.ecologie.gouv.fr/strategie-dacceleration-recyclabilite-recyclage-reincorporation-des-materiaux-recycles> (accessed May 6, 2021).
- [8] Appel à Manifestation d'Intérêt - Innovation et déploiement pour le recyclage et la valorisation des matériaux 2020. AD'OCC 2020. <https://www.agence-adocc.com/appels-a-projet-termine/appel-a-manifestation-dinteret-innovation-et-deploiement-pour-le-recyclage-et-la-valorisation-des-materiaux-2020/> (accessed May 4, 2021).
- [9] Retour sur l'atelier «Matériaux composites et solutions durables: de la conception à la fin de vie». Agence Dév Innov Nouv-Aquitaine 2020. <https://www.adi-na.fr/actualites/retour-sur-latelier-materiaux-composites-et-solutions-durables-de-la-conception-a-la-fin-de-vie.html> (accessed May 4, 2021).
- [10] Architecture made from wind blades, ANMET Andrzej Adamcio n.d. <https://www.anmet.com.pl/architecture-made-from-wind-blades/?lang=en> (accessed May 5, 2021).
- [11] Home - A Piece of Sky n.d. <https://www.apieceofsky.airbus.com/> (accessed May 5, 2021).
- [12] 747 Wing House — David Hertz Architects FAIA & The

Studio of Environmental Architecture n.d. <https://davidhertzfaia.com/747-wing-house> (accessed May 5, 2021).

[13] Zhang J, Chevali VS, Wang H, Wang C-H. Current status of carbon fibre and carbon fibre composites recycling. *Compos Part B Eng* 2020;193:108053. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2020.108053>.

[14] Avila R. Environmental Challenges & Trends in Aeronautical Industry n.d.

[15] Comité Recyclage Composites France. Guide du Recyclage des Composites. 2017.

[16] Oliveux G, Dandy LO, Leeke GA. Current status of recycling of fibre reinforced polymers: Review of technologies, reuse and resulting properties. *Prog Mater Sci* 2015;72:61–99. <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2015.01.004>.

[17] Pakdel E, Kashi S, Varley R, Wang X. Recent progress in recycling carbon fibre reinforced composites and dry carbon fibre wastes. *Resour Conserv Recycl* 2021;166:105340. <https://doi.org/10.1016/j.resconrec.2020.105340>.

[18] Pimenta S, Pinho ST. The effect of recycling on the mechanical response of carbon fibres and their composites. *Compos Struct* 2012;94:3669–84. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2012.05.024>.

[19] Chaabani C. Composites à fibres de carbone : récupération des fibres par solvolysé hydrothermale. Impact sur la qualité des fibres et valorisation de la phase liquide. Theses. Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, 2017.

[20] Ye SY. Valorisation de déchets composites à matrices polymériques renforcées de fibres de carbone par un procédé de vapo-thermolyse. phd. 2012.

[21] Nunes AO. Composites renforcés à fibres de carbone : récupération des fibres par vapo-thermolyse, optimisation du procédé. phdthesis. Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, 2015.

[22] Boulanghien M. Formulations de composites thermostoplastiques à partir de fibres de carbone recyclées par vapo-thermolyse. phdthesis. Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, 2014.

[23] Piñero-Hernanz R, García-Serna J, Dodds C, Hyde J, Poliakoff M, Cocero MJ, et al. Chemical recycling of carbon fibre composites using alcohols under subcritical and supercritical conditions. *J Supercrit Fluids* 2008;46:83–92. <https://doi.org/10.1016/j.supflu.2008.02.008>.

[24] R'Mili M, Bouchaour T, Merle P. Estimation of Weibull parameters from loose-bundle tests. *Compos Sci Technol* 1996;56:831–4. [https://doi.org/10.1016/0266-3538\(96\)00028-0](https://doi.org/10.1016/0266-3538(96)00028-0).

[25] R'Mili M, Murat M. Caractérisation des fibres par amélioration de l'essai sur mèche avec mesure directe de la déformation. *Comptes Rendus Académie Sci - Ser IIB - Mech-Phys-Chem-Astron* 1997;324:355–64. [https://doi.org/10.1016/S1251-8069\(99\)80046-3](https://doi.org/10.1016/S1251-8069(99)80046-3).

[26] R'Mili M, Moevus M, Godin N. Statistical fracture of E-glass fibres using a bundle tensile test and acoustic emission monitoring. *Compos Sci Technol* 1999;68:1800–8. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2008.01.018>.

[27] R'Mili M, Lamon J. Investigation of subcritical crack growth using load relaxation tests on fiber bundles. *Acta Mater* 2011;59:2850–7. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2011.01.024>.

[28] R'Mili M, Massardier V, Merle P, Vincent H, Vincent C. The effect of thermal exposure on the strength distribution of B4C coated carbon fibers. *Carbon* 1999;37:129–45. [https://doi.org/10.1016/S0008-6223\(98\)00197-3](https://doi.org/10.1016/S0008-6223(98)00197-3).

[29] R'Mili M, Godin N, Lamon J. Flaw strength distributions and statistical parameters for ceramic fibers: The normal distribution. *Phys Rev E* 2012;85:051106. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.85.051106>.

[30] Coleman BD. On the strength of classical fibres and fibre bundles. *J Mech Phys Solids* 1958;7:60–70. [https://doi.org/10.1016/0022-5096\(58\)90039-5](https://doi.org/10.1016/0022-5096(58)90039-5).

[31] Weibull W. A Statistical Distribution Function of Wide Applicability. *J Appl Mech* 1951;18:293–7. <https://doi.org/10.1115/1.4010337>.

[32] Hengstermann M, Hasan MMB, Scheffler C, Abdkader A, Cherif C. Development of a new hybrid yarn construction from recycled carbon fibres for high-performance composites. Part III: Influence of sizing on textile processing and composite properties. *J Thermoplast Compos Mater* 2019;0892705719847240. <https://doi.org/10.1177/0892705719847240>.

[33] Garat W, Pucci MF, Leger R, Govignon Q, Berthet F, Perrin D, et al. Surface energy determination of fibres for Liquid Composite Moulding processes: Method to estimate equilibrium contact angles from static and quasi-static data. *Colloids Surf Physicochem Eng Asp* 2021;611:125787. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2020.125787>.

[34] Jlassi S. Composites à fibres de carbone recyclées : variabilité des sources et optimisation des performances mécaniques. These de doctorat. Ecole nationale des Mines d'Albi-Carmaux, 2019.

[35] Pickering SJ, Liu Z, Turner TA, Wong KH. Applications for carbon fibre recovered from composites. *IOP Conf Ser Mater Sci Eng* 2016;139:012005.

<https://doi.org/10.1088/1757-899X/139/1/012005>.

[36] Gardiner G. Recycled carbon fiber update: The supply side. *Compos World* 2014.

[37] Giannadakis K, Szpieg M, Varna J. Mechanical Performance of a Recycled Carbon Fibre/PP Composite. *Exp Mech* 2011;51:767–77. <https://doi.org/10.1007/s11340-010-9369-8>.

[38] Wölling J, Schmiege M, Manis F, Drechsler K. Nonwovens from Recycled Carbon Fibres – Comparison of Processing Technologies. *Procedia CIRP* 2017;66:271–6. <https://doi.org/10.1016/j.procir.2017.03.281>.

[39] FORMAX and carbon multiaxials. *Reinf Plast* 2013;57:24–5. [https://doi.org/10.1016/S0034-3617\(13\)70122-X](https://doi.org/10.1016/S0034-3617(13)70122-X).

[40] CARBISOTM M - ELG CARBON FIBRE LTD. - PDF Catalogs | Technical Documentation | Brochure n.d.

[41] CarbisotM C - ELG CARBON FIBRE LTD. - PDF Catalogs | Technical Documentation | Brochure n.d.

[42] Saburov O, Huether J, Maertens R, Trauth A, Kechaou Y, Henning F, et al. A Direct Process to Reuse Dry Fiber Production Waste for Recycled Carbon Fiber Bulk Molding Compounds. *Procedia CIRP* 2017;66:265–70. <https://doi.org/10.1016/j.procir.2017.03.280>.

[43] Vartega. Vartega n.d. <https://www.vartega.com> (accessed May 25, 2021).

[44] Development and validation of recycled carbon fiber-based binder tapes for automated tape laying processes - Oliver Rimmel, David May, Christian Goergen, Artur Poeppel, Peter Mitschang, 2019 n.d. <https://journals.sagepub.com/doi/full/10.1177/0021998318820422> (accessed May 25, 2021).

[45] Holmes M. Recycled carbon fiber composites become a reality. *Reinf Plast* 2018;62:148–53. <https://doi.org/10.1016/j.repl.2017.11.012>.

[46] Sigmatex - Carbon fibre for composite material applications n.d. /recycled-fabrics (accessed May 25, 2021).

[47] Large scale demonstration of new circular economy value-chains based on the reuse of end-of-life fiber reinforced composites. | FiberEUUse Project | H2020 | CORDIS | European Commission n.d. <https://cordis.europa.eu/project/id/730323/results> (accessed January 27, 2021).

[48] Tapper RJ, Longana ML, Yu H, Hamerton I, Potter KD. Development of a closed-loop recycling process for discontinuous carbon fibre polypropylene composites. *Compos Part B Eng* 2018;146:222–31. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.03.048>.

[49] Aravindan P, Becagli F, Longana ML, Blok LG, Pozegic TR, Huntley SJ, et al. Remanufacturing of Woven Carbon Fibre Fabric Production Waste into High Performance Aligned Discontinuous Fibre Composites. *J Compos Sci* 2020;4:68. <https://doi.org/10.3390/jcs4020068>.

[50] Mantaux O, Gillet A, Pedros M. Method for Unweaving and Realigning Carbon Fibres, 2016.

[51] Hasan MMB, Nitsche S, Abdkader A, Cherif C. Properties of CF/PA6 friction spun hybrid yarns for textile reinforced thermoplastic composites. *IOP Conf Ser Mater Sci Eng* 2017;254:042013. <https://doi.org/10.1088/1757-899X/254/4/042013>.

[52] Hasan MMB, Nitsche S, Abdkader A, Cherif C. Carbon fibre reinforced thermoplastic composites developed from innovative hybrid yarn structures consisting of staple carbon fibres and polyamide 6 fibres. *Compos Sci Technol* 2018;167:379–87. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2018.08.030>.

[53] Hasan MMB, Abdkader A, Cherif Ch, Spennato F. Fibre hybrid composites consisting of discontinuous waste carbon fibre and continuous glass filaments developed for load-bearing structures with improved impact strength. *Compos Part Appl Sci Manuf* 2019;126:105610. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2019.105610>.

[54] Badrul Hasan MM, Nitsche S, Abdkader A, Cherif C. Influence of process parameters on the tensile properties of DREF-3000 friction spun hybrid yarns consisting of waste staple carbon fibre for thermoplastic composites. *Text Res J* 2019;89:32–42. <https://doi.org/10.1177/0040517517736472>.

[55] Kravchenko SG, Sommer DE, Pipes RB. Uniaxial strength of a composite array of overlaid and aligned prepreg platelets. *Compos Part Appl Sci Manuf* 2018;109:31–47. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2018.02.032>.

[56] Gillet A, Mantaux O. Interaction microstructure/propriétés dans un matériau composite à fibres de carbone recyclées. 21ème Congrès Fr. Mécanique, Bordeaux: 2013, p. 6.

[57] MANTAUX O, Gillet D, Arnaud Max, Cazaurang G, Lacomte E. Réalisation de pièces structurales de technicité croissante pour le nautisme de compétition à partir de fibres de carbone recyclées. 21ème Journ. Natl. Sur Compos., Bordeaux, Talence, France: Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers (ENSAM) - Bordeaux; 2019.

[58] GAY D. Matériaux composites. Lavoisier. 2015.

[59] Kravchenko SG, Sommer DE, Denos BR, Favaloro AJ, Tow CM, Avery WB, et al. Tensile properties of a stochastic prepreg platelet molded composite. *Compos Part Appl Sci Manuf* 2019;124:105507. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2019.105507>.

sa.2019.105507.

[60] Liu Z, Turner TA, Wong KH, Pickering SJ. Development of high performance recycled carbon fibre composites with an advanced hydrodynamic fibre alignment process. *J Clean Prod* 2021;278:123785. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2020.123785>.

[61] Li Y, Pimenta S, Singgih J, Nothdurfter S, Schuffenhauer K. Experimental investigation of randomly-oriented tow-based discontinuous composites and their equivalent laminates. *Compos Part Appl Sci Manuf* 2017;102:64–75. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2017.06.031>.

[62] Oliveux G, Bailleul J-L, Gillet A, Mantaux O, Leeke GA. Recovery and reuse of discontinuous carbon fibres by solvolysis: Realignment and properties of remanufactured materials. *Compos Sci Technol* 2017;139:99–108. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2016.11.001>.

[63] Gillet A, Mantaux O, Cazaurang G. Characterization of composite materials made from discontinuous carbon fibres within the framework of composite recycling. *Compos Part Appl Sci Manuf* 2015;75:89–95. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.05.002>.

[64] Tapper RJ, Longana ML, Hamerton I, Potter KD. A closed-loop recycling process for discontinuous carbon fibre polyamide 6 composites. *Compos Part B Eng* 2019;179:107418. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2019.107418>.

[65] Akonda MH, Lawrence CA, Weager BM. Recycled carbon fibre-reinforced polypropylene thermoplastic composites. *Compos Part Appl Sci Manuf* 2012;43:79–86. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2011.09.014>.

[66] Akonda M, EL-Dessouky H, Lawrence C, Weager B. A novel non-crimped thermoplastic fabric prepreg from waste carbon and polyester fibres. *J Compos Mater* 2014;48:843–51. <https://doi.org/10.1177/0021998313478992>.

[67] Vo Dong PA, Azzaro-Pantel C, Cadene A-L. Economic and environmental assessment of recovery and disposal pathways for CFRP waste management. *Resour Conserv Recycl* 2018;133:63–75. <https://doi.org/10.1016/j.resconrec.2018.01.024>.

[68] Poirier D. 04-Valorisation-des-bateaux-échoués-en-fibres-de-verre-Daniel-Poirier-CDCQ.pdf, Drumondville (Canada): 2019.

[69] Di Mauro C, Malburet S, Graillet A, Mija A. Recyclable, Repairable, and Reshapable (3R) Thermoset Materials with Shape Memory Properties from Bio-Based Epoxidized Vegetable Oils. *ACS Appl Bio Mater* 2020;3:8094–104. <https://doi.org/10.1021/acsabm.0c01199>.

[70] Meng F, McKechnie J, Turner T, Wong KH, Pickering SJ. Environmental Aspects of Use of Recycled Carbon Fiber Composites in Automotive Applications. *Environ Sci Technol* 2017;51:12727–36. <https://doi.org/10.1021/acs.est.7b04069>.

L'ÉCHELLE DE LANSINK 2.0

