

# Fabrication de tapes thermoplastiques en PET recyclé : une approche innovante exploitant la capillarité

## *A Capillarity-Focused Methodology for Designing Thermoplastic Tapes from Recycled PET*

Elise Mathouillot<sup>1</sup>, Monica-Francesca Pucci<sup>2</sup>, Pierre-Jacques Liotier<sup>1</sup>

1 : Equipe PCH, C2MA  
IMT Mines Alès  
6 Av. de Clavières, 30100 Alès

E-mail : [elise.mathouillot@mines-ales.fr](mailto:elise.mathouillot@mines-ales.fr) et [pierre-jacques.liotier@mines-ales.fr](mailto:pierre-jacques.liotier@mines-ales.fr)

2 : Equipe DMS, C2MA  
LMGC, IMT Mines Alès  
6 Av. de Clavières, 30100 Alès  
E-mail : [monica.pucci@mines-ales.fr](mailto:monica.pucci@mines-ales.fr)

### Résumé

Le Polyéthylène Terephthalate (PET) est un des polymères le plus utilisé dans le monde dû à ses caractéristiques mécaniques et ses hautes performances [1]. Cependant, son caractère persistant dans l'environnement présente de nombreux problèmes en termes de pollution environnementale. C'est pourquoi aujourd'hui le PET est le polymère le plus recyclé mais les méthodes de recyclage actuelles présentent de nombreuses limitations. L'énergie utilisée pour le recyclage du PET est importante et on sait maintenant que les procédés actuels dégradent le matériau au fil des cycles de recyclage [2]. C'est pourquoi dans une démarche d'économie circulaire, une approche innovante pour recycler le PET sous forme de tapes thermoplastiques renforcés par des fibres est proposée. Dans cette étude, nous nous intéresserons à au procédé de fabrication des tapes thermoplastiques par dissolution de PET, en se focalisant sur l'imprégnation des fibres et les phénomènes capillaires et visqueux engendrés. Cet aspect du procédé est déterminant pour maximiser l'imprégnation et réduire les porosités induites dans le matériau final [3]. Cette étude amène une nouvelle voie de fabrication de tapes thermoplastiques en combinant recyclabilité et économie circulaire avec la performance.

### Abstract

Polyethylene Terephthalate (PET) is one of the most widely used polymers in the world, thanks to its mechanical properties and high performance [1]. However, its persistence in the environment presents several problems in terms of environmental pollution. This is why PET is the most widely recycled polymer today, but current recycling methods have many limitations. The energy used to recycle PET is considerable and it is known that the material is degraded over the course of recycling cycles [2]. This is why, in a circular economic approach, a new innovative approach to recycling PET in the form of fiber-reinforced thermoplastic tapes has been proposed. In this study, we will focus on the thermoplastic tape manufacturing process using dissolved PET, with a focus on the fiber impregnation and the associated capillary and viscous phenomena. This aspect of the process is determinant to maximize impregnation and reduce the porosity induced in the final material [3]. This study leads to a new way of manufacturing thermoplastic tapes, combining recyclability and circular economy with performance.

**Mots Clés :** Recyclage, PET, Tape Thermoplastique, Capillarité

**Keywords :** Recycling, PET, Thermoplastic Tape, Capillarity

## 1. Introduction

Le PET est très utilisé dans l'industrie [1] (alimentaire, textiles,...) : léger, transparent et robuste, il présente des caractéristiques très utiles. Cependant, le PET est un des polluants majeurs. En effet, c'est plusieurs milliers de tonnes de ce polymère qui polluent les écosystèmes terrestres et marins [4]. Malgré une quantité significative de PET recyclé, les méthodes actuelles présentent des limitations :

elles demandent une grande quantité d'énergie et induisent une dégradation après le premier cycle de recyclage [2].

Les matériaux composites élaborés par dépôt de tapes thermoplastiques semblent être des matériaux prometteurs dans l'industrie car ils peuvent être potentiellement recyclables ou constitués de matière recyclée [5]. Ils présentent néanmoins plusieurs défis tels que l'obtention d'un tape thermoplastique uniforme en maximisant l'imprégnation de la solution dans le renfort fibreux.

Cette étude a donc pour objectif de développer une méthode innovante de fabrication de tapes thermoplastiques à partir de PET recyclé. De plus, dans une démarche d'économie circulaire (Fig. 1) les tapes thermoplastiques seront également recyclables. Cette approche se concentre essentiellement sur la compréhension de la capillarité et des comportements rhéologiques des éléments qui composent le matériau afin d'améliorer la qualité de l'imprégnation et de garantir la qualité des tapes thermoplastiques.

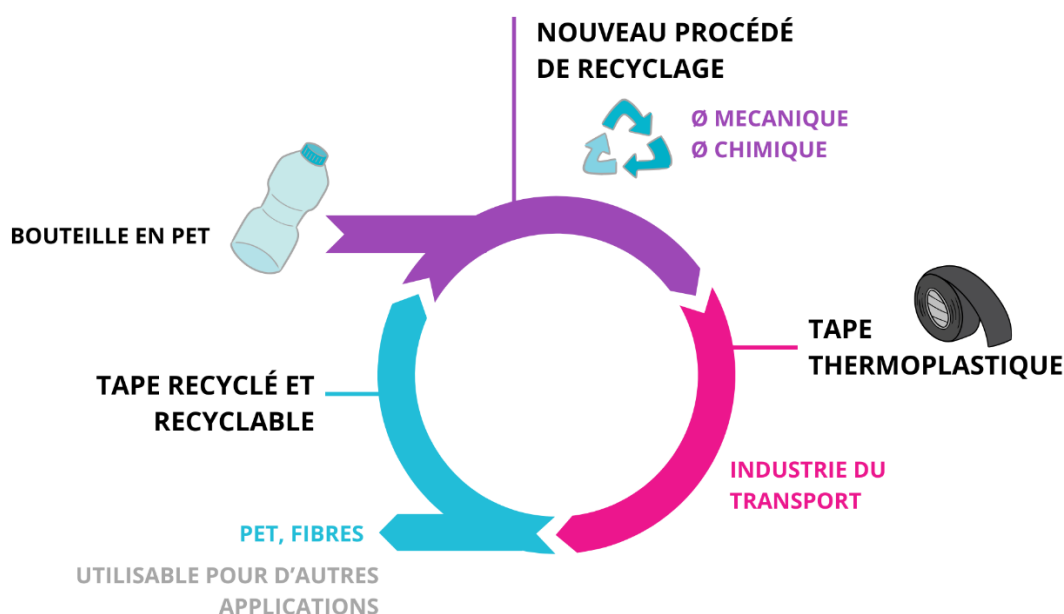


Figure 1. Schéma de la circularité du nouveau procédé de recyclage du PET

## 2. Matériaux et Méthodes

### 2.1 Matériaux

Différents types de PET ont été utilisés pour réaliser les essais : du PET vierge sous forme de granules, du PET provenant de déchets de post-consommation type bouteille et du PET issus de plage ou récupéré à la surface de la mer Méditerranée donné par la société EffetMer. Des renforts en fibres de carbone ont été utilisés pour la fabrication des tapes thermoplastiques. La méthode repose sur l'utilisation d'un solvant qui sera utilisé pour dissoudre le PET et obtenir une solution de polymère. Ensuite le non-solvant sera incorporé à la solution de polymère pour provoquer la précipitation du PET. Dans le cas du renfort fibreux, la mèche sera plongée dans la solution de polymère où, par montée capillaire, les fibres de carbone seront imprégnées de solution. Ensuite, la mèche pré-imprégnée sera plongée dans le non-solvant qui va induire la précipitation du PET au sein du renfort

fibreuse. Des couples de solvant/non-solvant ont été sélectionnés grâce à la méthode de Hansen [6] pour dissoudre efficacement le PET tout en garantissant une bonne miscibilité entre le solvant et le non-solvant.

## 2.2 Méthodologie

L'étude de l'imprégnation de la solution dans le renfort fibreux sera menée à l'aide de montées capillaires. Des essais sont réalisés avec un porte-échantillon cylindrique avec un rayon ( $R$ ) constant pour avoir un volume de fibre constant. Le rayon poreux ( $\bar{r}$ ) a été déterminé avec des essais menés avec le n-hexane [7]. Les courbes obtenues de la masse au carré en fonction du temps vont être exploitées grâce à l'équation de Washburn [7] [8] (Eq. 1). Les paramètres de l'équation seront déterminés expérimentalement.

La tension de surface de nos différentes solutions polymères et des solvants seuls seront déterminées à l'aide de la méthode de Wilhelmy [8], [9]. La viscosité des solvants et des différentes solutions polymères seront également déterminées à l'aide d'un rhéomètre. Cette approche sera utilisée pour la caractérisation des interactions entre la solution de polymère et des fibres en s'intéressant particulièrement à la réduction des porosités induites dans le matériau et à l'optimisation de l'imprégnation de la solution de polymère.

$$m^2(t) = \left[ \frac{(c\bar{r})\epsilon^2(\pi R^2)^2}{2} \right] \frac{\rho^2 \gamma_L \cos\theta_a}{\eta} t \quad (\text{Eq. 1})$$

$\theta$  : Angle de contact ( $^\circ$ C) ;  $\gamma_L$  : Tension de surface (N/m) ;  $\eta$  : Viscosité dynamique (Pa/s) ;  $\rho$  : Densité du liquide ( $\text{kg/m}^3$ ) ;  $\epsilon$  : Porosité ;  $c$  : facteur géométrique lié à la tortuosité ;  $\bar{r}$  : Rayon poreux moyen (m) ;  $R$  : Rayon du porte échantillon (m) ;  $t$  : Temps (s)

Les courbes de viscosité avec un taux de cisaillement différents nous permettront d'identifier la plage optimale de viscosité pour maximiser l'imprégnation [10]. L'objectif final de ces analyses est de modéliser une dynamique d'imprégnation pour optimiser les conditions expérimentales de la fabrication des tapes thermoplastiques pour réduire les porosités résiduelles dans le semi-produit.

Cette méthodologie va permettre de comprendre en détail les phénomènes capillaires en jeu lors de l'imprégnation des fibres de carbone par notre solution de polymère, amenant à la production de tapes thermoplastiques de qualité et homogènes.

## 3. Preuve de Concept

Une preuve de concept a été réalisée pour démontrer la faisabilité de la fabrication de tapes thermoplastiques en utilisant du PET recyclé comme matrice polymère. La méthode de dissolution/précipitation est menée à l'aide de solvants sélectionnés pour leur capacité à dissoudre le PET à température ambiante [6]. Ce principe est similaire à la méthode utilisée couramment dans la fabrication de membrane par inversion de phase [11], [12].

Dans cette méthode, le renfort fibreux sous forme de mèche va être immergé dans une solution de PET dissous pendant quelques secondes. Ensuite, les fibres de carbone imprégnées de solution de polymère vont être immergées dans le non-solvant, ce qui déclenche la précipitation du PET par diffusion et échange de solvants (Fig. 2). Sur la figure 3, le PET précipité (en blanc) se trouve à la fois à la surface des fibres de carbone (en noir) ainsi qu'à l'intérieur de la mèche entre les différentes fibres mais avec des porosités réparties de manière hétérogène dans le composite. Cette étude avec la

compréhension et l'optimisation des différents paramètres énoncés précédemment va permettre de fabriquer une tpe plus homogène.

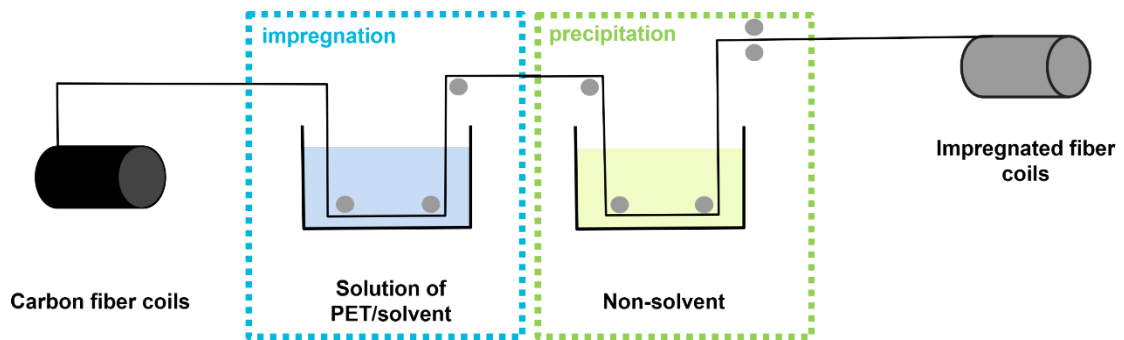


Figure 2. Schéma du procédé de fabrication des tpe thermoplastiques à partir de PET recyclé



Figure 3. Preuve de concept d'une tpe thermoplastique à partir de PET recyclé avec un renfort fibreux en carbone

#### 4. Conclusion

Cette étude présente une approche innovante pour transformer un déchet tel que le PET en matériau composite performant. L'optimisation de l'impregnation par phénomènes capillaires est une partie très importante du process. En comprenant les paramètres de mouillage et d'impregnation et en affinant les propriétés rhéologiques, cette méthode permet de réduire considérablement les porosités et de garantir des propriétés mécaniques supérieures. Les travaux futurs se concentreront sur le développement de ce procédé à échelle semi-industrielle ainsi que de l'exploration du processus avec des fibres naturelles.

## Références

- [1] E. J. Velásquez, L. Garrido, A. Guarda, M. J. Galotto, et C. López de Dicastillo, « Increasing the incorporation of recycled PET on polymeric blends through the reinforcement with commercial nanoclays », *Appl. Clay Sci.*, vol. 180, p. 105185, nov. 2019, doi: 10.1016/j.clay.2019.105185.
- [2] H. Wu, S. Lv, Y. He, et J.-P. Qu, « The study of the thermomechanical degradation and mechanical properties of PET recycled by industrial-scale elongational processing », *Polym. Test.*, vol. 77, p. 105882, août 2019, doi: 10.1016/j.polymertesting.2019.04.029.
- [3] M. F. Pucci, B. Duchemin, M. Gomina, et J. Bréard, « Temperature effect on dynamic wetting of cellulosic substrates by molten polymers for composite processing », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 114, p. 307-315, nov. 2018, doi: 10.1016/j.compositesa.2018.08.031.
- [4] M. Eriksen *et al.*, « Plastic Pollution in the World's Oceans: More than 5 Trillion Plastic Pieces Weighing over 250,000 Tons Afloat at Sea », *PLOS ONE*, vol. 9, n° 12, p. e111913, déc. 2014, doi: 10.1371/journal.pone.0111913.
- [5] G. Dolo, « Étude expérimentale et modélisation du procédé de placement de fibres avec chauffe laser », 2017.
- [6] C. M. Hansen, *Hansen Solubility Parameters: A User's Handbook, Second Edition*, 2<sup>e</sup> éd. Boca Raton: CRC Press, 2007. doi: 10.1201/9781420006834.
- [7] M. F. Pucci, P.-J. Liotier, et S. Drapier, « Capillary wicking in a fibrous reinforcement – Orthotropic issues to determine the capillary pressure components », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 77, p. 133-141, oct. 2015, doi: 10.1016/j.compositesa.2015.05.031.
- [8] M. Pucci, « PhD Thesis - Elaboration de composites bio-sourcés par procédés d'élaboration directe : Etude et modification des interfaces lors de l'imprégnation. », 2016.
- [9] C. D. Volpe et S. Siboni, « The Wilhelmy method: a critical and practical review », *Surf. Innov.*, vol. 6, n° 3, p. 120-132, juill. 2018, doi: 10.1680/jsuin.17.00059.
- [10] I. Cusano, L. Campagnolo, M. Aurilia, S. Costanzo, et N. Grizzuti, « Rheology of Recycled PET », *Materials*, vol. 16, n° 9, Art. n° 9, janv. 2023, doi: 10.3390/ma16093358.
- [11] B. T. I. Ali, N. Widiastuti, Y. Kusumawati, A. L. Ivansyah, et J. Jaafar, « Solvent selection in membrane preparation from polyethylene terephthalate plastic waste: computational and experimental study », *Mater. Res. Express*, vol. 9, n° 12, p. 125302, déc. 2022, doi: 10.1088/2053-1591/aca5f0.
- [12] M. Mulder, *Basic Principles of Membrane Technology*. Springer Science & Business Media, 2012.