

Une Étude des Fibres Naturelles Vietnamiennes Revêtues d'Oxyde de Graphène pour des Applications de Composites Durables

Study of Vietnamese Natural Fibers Coated with Graphene Oxide for Sustainable Composite Applications

Nathan Iderne¹, Van Nhat Pham², Cuong Ha Minh³

1 : Ecole normale supérieure Paris-Saclay
Université Paris-Saclay
91190, Gif-Sur-Yvette, France
e-mail : nathan.iderne@ens-paris-saclay.fr

2 : Laboratoire de Science des Matériaux Avancés et de Nanotechnologie
Université des Sciences et Technologies de Hanoï
Hanoï, Vietnam
e-mail : pham-van.nhat@usth.edu.vn

3 : Université Paris-Saclay, Centrale-Supélec, ENS Paris-Saclay, CNRS, LMPS
Laboratoire de mécanique Paris-Saclay
91190, Gif-Sur-Yvette, France
e-mail : cuong.ha-minh@ens-paris-saclay.fr

Résumé

Face aux conséquences négatives du changement climatique, de nombreux efforts sont en cours à l'échelle mondiale pour développer des alternatives biosourcées visant à remplacer les fibres synthétiques à usage technique. Cependant, reproduire les performances, la faible densité et la grande flexibilité des fibres synthétiques reste un défi. Une solution prometteuse répondant à ces critères est l'utilisation de fibres naturelles renforcées avec du graphène. Un des majeurs verrous scientifique concernant les fibres naturelles réside néanmoins dans leurs variations, qui dépendent de facteurs complexes tels que les conditions de croissance, notamment le sol et les conditions météorologiques. Dans cette étude, nous visons à analyser la performance mécanique de fibres extraites des feuilles d'ananas au Vietnam, revêtues d'oxyde de graphène. L'efficacité de divers processus physiques et chimiques pour améliorer les propriétés mécaniques des fibres naturelles a été quantitativement et qualitativement étudiée.

Abstract

Facing the negative consequences of climate change, numerous global efforts are underway to develop bio-based alternatives intended to replace synthetic fibers used in technical applications. However, reproducing the performance, low density, and high flexibility of synthetic fibers remains a challenge. A promising solution that meets these criteria is the use of natural fibers reinforced with graphene. One of the major scientific challenges regarding natural fibers lies in their variability, which depends on complex factors such as growth conditions—most notably soil and weather. In this study, we aim to analyze the mechanical performance of fibers extracted from pineapple leaves in Vietnam, coated with graphene oxide. The effectiveness of various physical and chemical processes to enhance the mechanical properties of natural fibers was investigated both quantitatively and qualitatively.

Mots Clés : fibres naturelles, oxyde de graphène, composites durables, propriétés mécaniques, traitement chimique

Keywords : natural fibers, graphene oxide, sustainable composites, mechanical properties, chemical treatment

1. Introduction

Les fibres naturelles revêtues de graphène sont considérées comme une des alternatives écologiques potentielles aux fibres de verre ou de carbone, offrant de bonnes propriétés mécaniques, une densité plus faible et une durabilité accrue [1].

Un verrou scientifique concernant les fibres naturelles réside néanmoins dans leurs variations, qui dépendent de facteurs complexes tels que les conditions de croissance, notamment le sol et les

conditions météorologiques [2, 3]. Pour contribuer à résoudre ce défi, dans cette étude, nous visons à analyser la performance mécanique de fibres extraites des feuilles d'ananas au Vietnam, revêtues d'oxyde de graphène. À nos connaissances, il n'y a pas encore une étude similaire jusqu'à maintenant. Cette étude vise à identifier les traitements et méthodes de revêtement optimaux pour des applications industrielles, ouvrant la voie à des alternatives écologiques aux matériaux composites conventionnels [10]. L'efficacité de divers processus physiques et chimiques pour améliorer les propriétés mécaniques des fibres naturelles a été quantitativement et qualitativement étudiée.

L'organisation de ce papier est comme suivant : Section 2 présente en détail nos travaux expérimentaux sur la préparation des éprouvettes et la réalisation des essais de traction ; Section 3 détaille le modèle d'homogénéisation Halpin-Tsai modifié qui est utilisé pour prédire le module d'élasticité dans cette étude ; Section 4 présente les résultats de cette étude avec les discussions ; Section 5 conclut cette étude avec les perspectives.

2. Description expérimentale et Modélisation

2.1. Préparation des fibres

Pour une adhésion efficace entre une fibre naturelle et le graphène, il est nécessaire d'éliminer les composants non celluloseux par des traitements chimiques ou physiques [4]. Dans cette étude, plusieurs étapes de préparation pour améliorer les propriétés de surface des fibres ont été testées. Finalement l'approche chimique utilisant une solution de NaOH 0.5% a été choisie.

En plus, le revêtement de graphène a été appliqué en trempant les fibres dans des solutions de GO. L'oxyde de graphène possède des groupes fonctionnels polaires comme les groupes hydroxyle, époxy ou encore carboxyle. Ces groupes polaires interagissent avec les groupes hydroxyle des fibres celluloseux, formant des liaisons hydrogène. Ces interactions augmentent l'adhésion entre les fibres et le GO, le choix de l'oxyde de graphène est alors justifié en ce sens.

Les effets de ces traitements ont été évalués à l'aide de techniques comme FTIR, SEM, XRD et les tests de résistance à la traction [6, 7, 8, 9].

Sélection des fibres et Traitement des fibres

Les fibres de feuilles d'ananas utilisées dans cette étude sont largement commercialisées au Vietnam. Nous avons utilisé une solution alcaline d'hydroxyde de sodium à 0.5 % en poids pour éliminer les parties non celluloseux. Les fibres sont lavées, séchées, puis immergées dans de l'eau à différentes températures. Après séchage, les fibres sont traitées avec la solution alcaline en deux cycles pour éliminer les hémicelluloses, puis peignées pour être séparées et alignées [4].

Étape de revêtement

Les fibres sont trempées dans une solution d'oxyde de graphène (GO) pendant 30 minutes, puis séchées à 80°C pendant 30 minutes [9].

Mesure du Diamètre des fibres

Le diamètre des fibres est mesuré à l'aide d'un microscope optique (*Olympus BX53M*). Environ 10 fibres sont mesurées à 30 à 40 endroits différents.

2.2. Essai de traction

La norme ASTM C1557 est appliquée pour déterminer les propriétés de traction des fibres naturelles revêtues d'oxyde de graphène [11]. Les essais sont divisés en trois étapes :

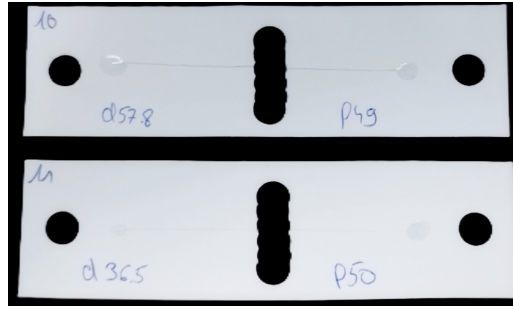


FIG. 1. – 2 échantillons prêts à être testés

Détection de la section la plus petite d'une fibre

L'objectif de cette étape est de localiser la position où la rupture d'une fibre sera initialisée pour bien poser cette fibre-là sur le support. L'idée est que cette position doit être au milieu de l'échantillon testé pour assurer la physique de l'essai. Les fibres sont séparées à la main pour isoler une seule fibre, puis placées sur une lame de microscope pour mesurer leur diamètre minimum.

Mise des échantillons sur un support de carton (Fig.1)

Des supports en carton sont préparés avec des trous au centre et pour sécuriser les deux côtés. Les fibres sont collées au carton à leurs extrémités avec une colle cyanoacrylate (DUCANHBOND). Le numéro, le diamètre minimum initial et la longueur de la fibre sont inscrits sur le carton. Après 12 heures dans des conditions de laboratoire (26°C, 60% d'humidité), les échantillons sont testés.

Test des fibres

Les échantillons sont montés dans la machine d'essai de résistance à la traction personnalisée. Les deux parties de support au milieu sont coupées afin de s'assurer que seule la fibre travaille pendant cet essai. La vitesse de la machine est réglée à 0,75 mm/min conformément à la norme ASTM C1557.

3. Modèle analytique

Les équations Eq. 1, Eq. 2 illustrent le modèle modifié de Halpin-Tsai qui est utilisé pour prédire le comportement des fibres revêtues dans cette étude.

$$E_L = E_m \left(\frac{1 + 2 \frac{L_f}{d_f} V_f C_L}{1 - V_f C_L} \right) \quad (\text{Eq. 1})$$

$$E_T = E_m \left(\frac{1 + 2 V_f C_T}{1 - V_f C_T} \right) \quad (\text{Eq. 2})$$

Où :

$$r = \frac{E_f}{E_m} \quad (\text{Eq. 3})$$

$$C_L = \frac{(r - 1)}{\left(r + 2 \frac{L_f}{d_f} \right)} \quad (\text{Eq. 4})$$

$$C_T = \frac{(r - 1)}{(r + 2)} \quad (\text{Eq. 5})$$

E_f représente le module de Young des fibres traitées alcalinement, appelées AT 0.5. L_f et d_f sont respectivement la longueur et le diamètre des fibres. V_f est la fraction volumique des fibres.

Ce modèle, initialement conçu pour les composites à fibres courtes alignées, a récemment démontré sa robustesse pour les fibres naturelles enrobées de graphène [4].

4. Résultats et Discussions

4.1. Diamètre des fibres

Le tableau 1 présente les mesures du diamètre de la fibre dans les trois cas différents : Fibres d'ananas non chimiquement traitées (UT), Fibres alcalinement traitées (AT 0.5), Fibres AT 0.5 revêtues de GO à 0.1% en poids (GO 0.1)

Type de fibre	Valeur moyenne	Incertitude de mesure
Fibres UT	96.71 μ m	9.94 μ m
AT 0.5	62.39 μ m	7.97 μ m
GO 0.1	58.93 μ m	7.78 μ m

TAB. 1. – Rapport des résultats pour le diamètre des fibres

Le revêtement de GO à 0.1 % en poids n'a pas significativement modifié le diamètre, tandis que le traitement alcalin a diminué ce dernier, en éliminant de nombreuses particules non cellulosiques [4].

4.2. Observations SEM

Les trois premiers types d'échantillons ci-dessus (UT, AT 0.5, GO 0.1) ont été observés pour évaluer l'efficacité du traitement alcalin et la présence de graphène [6]. La figure 2 montre une comparaison entre les fibres non traitées et AT 0.5. Des flocons ont été observés sur la fibre non traitée, correspondant à l'hémicellulose, la lignine, les composés inorganiques et les extraits. Après le traitement alcalin, ces flocons ont disparu, prouvant l'efficacité du traitement chimique NaOH.

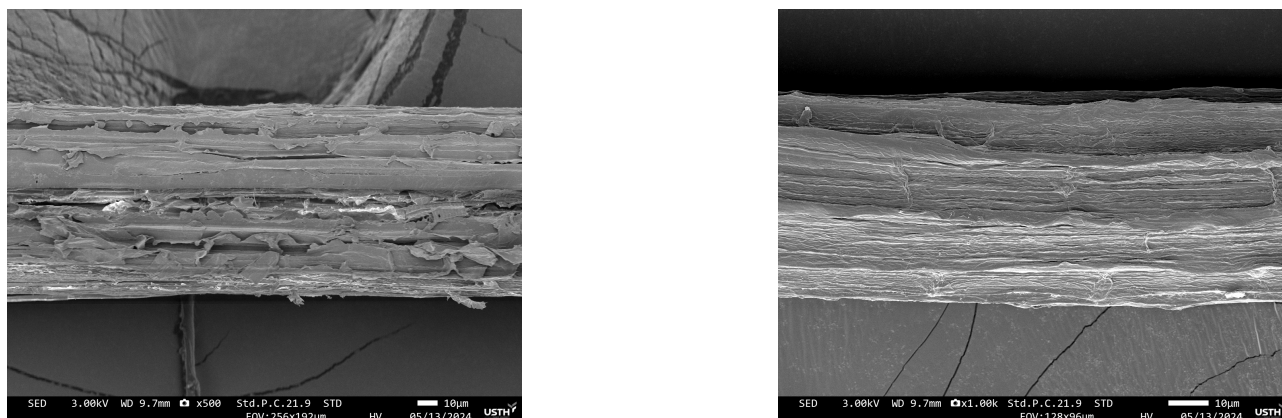


FIG. 2. – Images SEM d'une fibre non traitée UT (gauche) et d'une fibre AT 0.5 (droite)

Les résultats après le revêtement GO 0.1 sont maintenant observés dans la figure 3. De petites particules sont visibles sur la fibre revêtue de GO 0.1, absentes sur l'autre image. La taille de 53 particules de graphène déterminée est présentée dans le tableau 2. Il est à l'ordre de 138 nm.

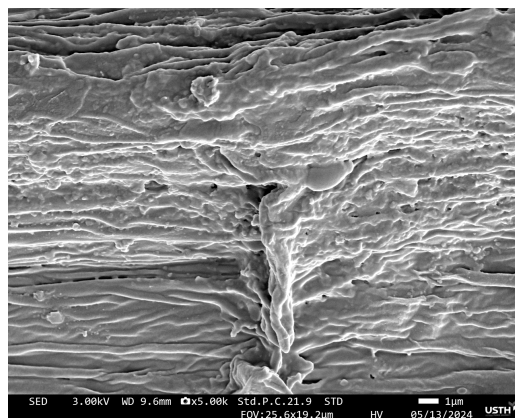
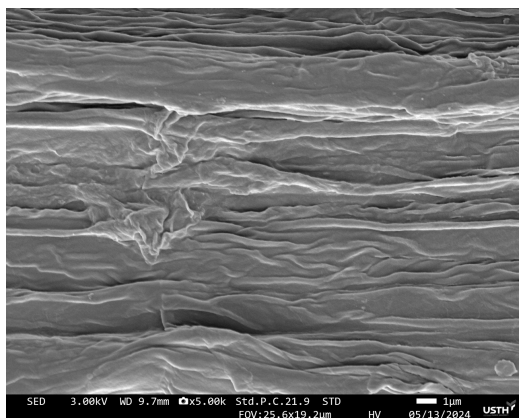


FIG. 3. – Images SEM d’une fibre traitée AT 0.5 (gauche) et d’une fibre revêtue de GO 0.1 (droite) (*5K)

Valeur moyenne	Écart-type	Incertitude
138.3nm	79.5nm	11.9nm

TAB. 2. – Rapport des résultats pour la taille des particules de graphène

4.3. Résistance à la traction des fibres

Les figures 4, 5 montrent la contrainte et la déformation à la rupture des types des quatre types d’éprouvettes : UT, AT 0.5, GO 0.1 et GO 1.0.

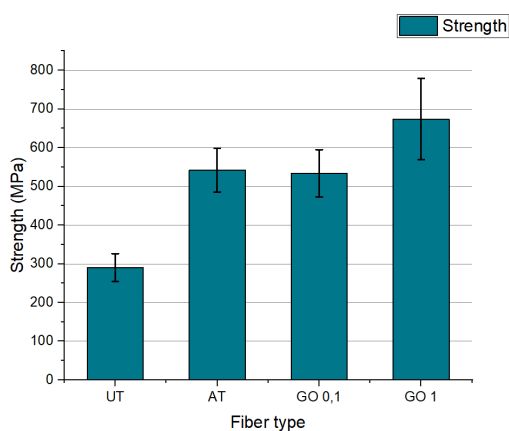


FIG. 4. – Résistance moyenne des fibres

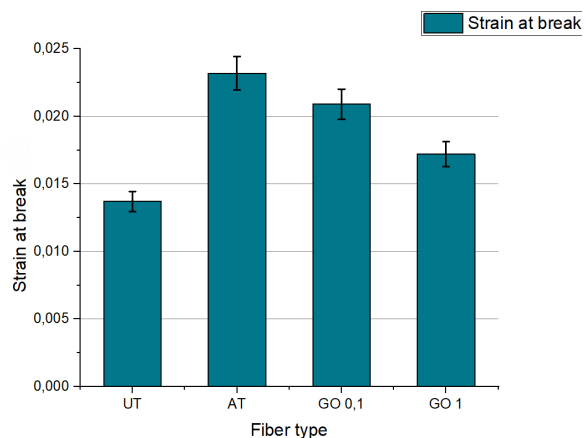


FIG. 5. – Déformation moyenne à la rupture

Les résultats montrent que plus la solution de GO est concentrée, plus la fibre est résistante. Le traitement alcalin améliore les propriétés mécaniques, tandis que le revêtement de GO réduit la déformation à la rupture. Ce résultat a également été trouvé dans [4, 9].

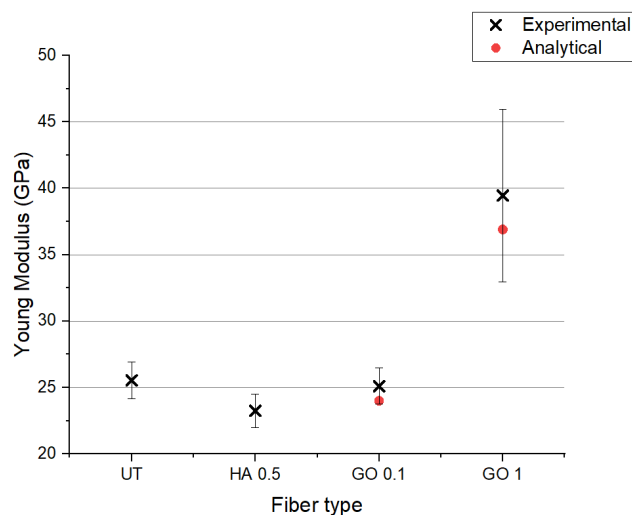


FIG. 6. – Module de Young moyen des fibres

La figure 6 présente une comparaison du module de Young entre expérimental et théorique pour les fibres GO 0.1 et GO 1.0, mesuré dans le domaine élastique de la fibre, ce dernier étant dominant dans son comportement en traction. L'application d'un revêtement d'oxyde de graphène à faible concentration (0.1 %) n'a pas montré d'amélioration significative de la résistance mécanique, bien qu'elle ait altéré l'apparence visuelle des fibres. Une concentration plus élevée (1 %) a démontré une augmentation notable de la résistance des fibres, bien que la déformation à la rupture ait été réduite. Le module de Young a été amélioré dans tous les cas, conformément aux prédictions du modèle de Halpin-Tsai [4].

Des erreurs peuvent être dues à un placement incorrect de l'angle de la machine de test de résistance à la traction, à la mesure de la longueur des fibres, à la mesure de la force, ou même à une imprécision dans la mesure de la section transversale [11].

5. Conclusions

Le travail réalisé dans cette étude a démontré l'efficacité du traitement chimique pour éliminer les composants non cellulotiques des fibres naturelles, améliorant ainsi leurs propriétés mécaniques.

Cette étude conclut que l'incorporation d'oxyde de graphène dans les fibres naturelles est une méthode prometteuse pour améliorer leurs propriétés mécaniques. Cependant, des recherches supplémentaires sont nécessaires pour affiner les processus et évaluer la faisabilité économique de la mise à l'échelle de cette méthode pour les applications industrielles.

Références

- [1] Shankar A. Hallad et al. Graphene Reinforced Natural Fiber Nanocomposites for Structural Applications *IOP Conference Series : Materials Science and Engineering* 2018 IOP Conf. Ser. : Mater. Sci. Eng. **376** 012072
- [2] Variability of mechanical properties of flax fibres for composite reinforcement. A review, *Industrial Crops and Products*, DOI : [10.1016/j.indcrop.2019.111984](https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2019.111984)
- [3] Chioma Ifeyinwa Madueke, Oguejiofor Miracle Mbah and Reginald Umunakwe. A review on the limitations of natural fibres and natural fibre composites with emphasis on tensile strength using coir as a case study, *Polym. Bull.* 80, 3489–3506 (2023). DOI : <https://doi.org/10.1007/s00289-022-04241-y>

- [4] Forkan Sarker, Nazmul Karim, Shaila Afroj, Vivek Koncherry, Kostya S. Novoselov and Prasad Potluri (2018) High-Performance Graphene-Based Natural Fiber Composites *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10**, 34502-34512
- [5] Cordeiro, Plasma Treatment of Natural Fibers to Improve Fiber-Matrix Compatibility *Doctoral thesis, COPPE UFRJ*, 2016
- [6] Fernanda Santos da Luz et al., (2020) Graphene-Incorporated Natural Fiber Polymer Composites : A First Overview *polymers 2020*, **12**
- [7] Belgacem, C. ; Serra-Parareda, F. ; Tarrés, Q. ; Mutjé, P. ; Delgado-Aguilar, M. ; Boufi, S, Valorization of Date Palm Waste for Plastic Reinforcement : Macro and Micromechanics of Flexural Strength *polymers 2021*, **1751**
- [8] Pandian Bothi Raja, Kabilashen Readdyi Munusamy, Veeradasan Perumal, Mohamad Nasir Mohamad Ibrahim , Characterization of nanomaterial used in Nanobioremediation *Elsevier 2022*, **57-83**
- [9] Pedro Henrique P. M. da Silveira et al., (2022) : Effect of Alkaline Treatment and Graphene Oxide Coating on Thermal and Chemical Properties of Hemp (*Cannabis Sativa L.*) Fibers, *Journal of Natural Fibers*, DOI : [10.1080/15440478.2022.2053265](https://doi.org/10.1080/15440478.2022.2053265)
- [10] Danmei Sun, Surface modification of natural fibers using plasma treatment, 2016, DOI : [10.1002/9781118911068.ch2](https://doi.org/10.1002/9781118911068.ch2)
- [11] C 1557 - 03, Standard Test Method for Tensile Strength and Young's Modulus of Fibers, Laurentian University