

①⑨ RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
—
**INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE**
—
COURBEVOIE
—

①① N° de publication : **3 052 780**
(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)
②① N° d'enregistrement national : **16 00963**
⑤① Int Cl⁸ : **C 08 J 5/04** (2017.01), D 06 M 15/01, 101/04, B 29 C
70/06, E 04 B 1/74

①②

BREVET D'INVENTION

B1

⑤④ BMH - BIO-MATERIAU HYBRIDE.

②② Date de dépôt : 16.06.16.

③③ Priorité :

④③ Date de mise à la disposition du public
de la demande : 22.12.17 Bulletin 17/51.

④⑤ Date de la mise à disposition du public du
brevet d'invention : 21.09.18 Bulletin 18/38.

⑤⑥ Liste des documents cités dans le rapport de
recherche :

Se reporter à la fin du présent fascicule

⑥⑥ Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

○ Demande(s) d'extension :

⑦① Demandeur(s) : GREENPILE — FR.

⑦② Inventeur(s) : LACROIX PATRICK ERIC,
BERGERET ANNE MARGUERITE PHILOMENE,
CORN STEPHANE JEAN STANISLAS, EL HAGE
ROLAND et LACOSTE CLEMENT.

⑦③ Titulaire(s) : GREENPILE.

⑦④ Mandataire(s) : GREENPILE.

FR 3 052 780 - B1



La présente invention s'applique au domaine technique des **matériaux avancés** et peut être destinée aux secteurs industriels, du transport, mobilier urbain, ou bien du bâtiment.

L'invention a pour objet un nouveau **matériau bio-composite** qui est conçu pour être fabriqué industriellement et dont les qualités techniques participent au confort des usagers.

5 La conception d'un nouveau matériau d'origine bio-sourcée soulève **plusieurs verrous** technologiques. Notamment ceux liés à la capacité du matériau à résister mécaniquement tout en admettant une certaine élasticité. A résister à des amplitudes de températures sans modification structurelle majeure. A résister à des taux élevés d'humidité sans modification structurelle majeure. Le comportement du matériau sous ces contraintes admettra un seuil
10 de résilience qui lui permettra de vieillir 'durablement', c'est-à-dire en respectant la santé et l'environnement, ceci de par la nature et tenue de ses composants naturels renouvelables.

La **conception** d'un nouveau matériau d'origine biosourcée conduit naturellement vers des choix de composants naturels renouvelables. Les contraintes évoquées supra impliquent d'associer plusieurs composants dont les **propriétés combinées** pour un seul matériau de
15 type bio-composite garantiront les caractéristiques et les performances visées pour des applications ciblées des secteurs industriels précités. On peut citer à titre d'exemples aussi divers ; les habillages intérieurs et garnitures de véhicules, les coques d'aéronefs et de navires, les mobiliers urbains, et les parois, cloisons, planchers d'ouvrages de bâtiment. Les matériaux de type bio-composite n'ont pas vocation à s'appliquer aussi diversement.

20 L'état de l'art met en avant des dispositifs innovants qui comportent le plus souvent des **limites imposées** par la nature intrinsèque des composants naturels renouvelables. D'où la nécessité pour la plupart d'entre eux de **lever les verrous**, en admettant soit d'introduire des composants ou additifs non bio-sourcés qui dérivent de la démarche initiale d'écoconception, soit en limitant les objectifs de performances initialement prévus,
25 et suivant le champ d'applications, et en aboutissant parfois à ces deux écueils.

Les écueils proviennent des propriétés des composants naturels et renouvelables inscrits dans la matrice d'autant plus que leur combinaison soulève des difficultés technologiques. Certains dispositifs tentent d'y pallier en introduisant des liants issus de la chimie pétrolière comme ceux cancérigènes de la famille des formaldéhydes ; MF, UF, MUF, PF, RPF.

30 Plusieurs laboratoires et quelques industriels ont choisi cette stratégie en déclinant des nouveaux matériaux à des coûts raisonnables pour leurs applications mais relativement nocifs pour l'environnement et la santé des opérateurs et des usagers.

Toutefois, quelques laboratoires élaborent de nouveaux matériaux composites biosourcés. Le Laboratoire d'Etudes et Recherche sur les Matériaux Bois (LERMAB) de l'Université de Nancy
35 propose une application pour panneaux de particules de bois soit un renfort de base issu du végétal associé à un liant à base de lignine glyoxalée et de tannins.

Le projet de recherche DEMETHER (DEveloppement de Matériaux bio-sourcés pour l'isolation THERmique des bâtiments) soutenu par l'ANR (APR Ecotechnologie 2011-2015) propose une application pour isolant thermique avec un renfort de base issu de sous-produits agricoles
40 comme le broyat de tournesol associé à un liant naturel de la famille des polysaccharides.

La présente invention porte sur l'**avancée technologique** que représente notre travail de recherche sur les nouveaux matériaux bio-composites, et dont les caractéristiques et le process de fabrication les distinguent des autres inventions actuellement connues.
45 Ce travail de recherche sur ces nouveaux matériaux bio-composites réalisé en laboratoire, garantit un travail de conception et un protocole d'essais, rigoureusement scientifiques.

Le travail de conception a porté sur les familles de **composants bio-sourcés** issus de l'agriculture raisonnée (dont la filière garantit une exploitation à faible empreinte environnementale), qu'il s'agit de végétaux bruts/recyclés ou de leurs sous-produits.

5 Nous avons d'abord étudié plusieurs **renforts végétaux** pour leurs propriétés connues et après un protocole d'essais pour l'expérimentation à l'échelle laboratoire, nous avons pu sélectionner les composants de **renforts** naturels et renouvelables suivants ;

- Balles céréalières,
- Fibres de miscanthus, fibres/étoupes de lin, fibres de coton, fibres de bois.

10 Nous avons parallèlement étudié plusieurs **matrices bio-sourcées** pour leurs propriétés connues et après un protocole d'essais pour l'expérimentation à l'échelle laboratoire, nous avons pu sélectionner les composants de **matrices** naturels et renouvelables suivants ;

- Protéines de lait, de blé, de soja,
- Polysaccharides comme l'alginate, le chitosane, la cellulose et ses dérivés,
- Bio-polymères comme les bio-polyesters.

15 La présente invention consiste à réussir à **combiner** de deux à quatre de ces composants de renforts avec un ou deux de ces composants de matrices pour obtenir un matériau **composite hybride exclusivement bio-sourcé**, et dont les caractéristiques techniques et le procédé de fabrication s'inscrivent dans une démarche de développement durable.

20 Le matériau bio-composite issu de la combinaison de plusieurs de ces composants de renfort avec un ou plusieurs composants de matrice atteint en masse sèche une proportion bio-sourcée à plus de 90% du composite.

En l'état des connaissances, il n'existe pas de combinaison d'un renfort à une matrice dont les composants sont de part et d'autre exclusivement d'origine bio-sourcée, et dont le matériau bio-composite est un hybride, lui-même bio-sourcé en masse sèche à plus 90%.

25 Les **caractéristiques** notables de ce nouveau matériau bio-composite tiennent à son comportement quand il est soumis à des **contraintes mécaniques et hygrothermiques**.

30 Les caractéristiques **mécaniques** de ce nouveau matériau bio-composite d'une épaisseur pouvant varier de 20 à 80 mm ont été mesurées en flexion et en compression. Le matériau peut atteindre une densité entre 180 et 450 kg/m³. Les formulations ont démontré qu'il peut supporter une contrainte maximale en flexion entre 100 et 600 daN/m² avec un module d'élasticité en flexion entre 1 et 25 MPa. En compression, la contrainte obtenue à 20% de déformation a été évaluée entre 500 et 1500 daN/m². Ces performances mécaniques ouvrent plusieurs champs d'application dans les secteurs industriels et du bâtiment cités.

La recherche a permis de lever le verrou que représente cet objectif de performances pour des matériaux bio-sourcés jusqu'au niveau atteint à plus de 90% de composants naturels.

35 Les caractéristiques mécaniques de ce matériau se comparent à celles du polystyrène HD.

Les caractéristiques **hygrothermiques** de ce nouveau matériau bio-composite d'une épaisseur pouvant varier de 20 à 80 mm ont été mesurées en conductivité entre 0,06 et 0,03 W/m/K avec une capacité thermique entre 900 et 1800 J/kg/K. Ces caractéristiques sont significatives pour des applications d'isolant thermique dans les secteurs précités.

40 Le niveau de sa capacité thermique lui confère la fonction de retardateur hygrométrique en contenant en quantité importante les frigories ou les calories selon la saison, ce qui pour des applications d'isolant dans les secteurs cités, influe directement sur le confort d'usage.

45 On peut considérer que les caractéristiques hygrothermiques de ce matériau bio-composite représentent une avancée technologique vers la nouvelle génération de matériaux hybrides et qu'il serait ainsi approprié de dénommer ce composite 'Bio-Matériau-Hybride' ou 'BMH'.

Le protocole d'essais pour l'**expérimentation** à l'échelle laboratoire s'est attaché à prédire les modes de préparation qui pourront être utilisés dans leurs diverses applications avec des procédés de fabrication industrielle les plus courants et également 'soutenables'.

5 En effet, si la présente invention représente une réelle avancée technologique dans la conception du biomatériau comme précisé supra, elle se doit de poursuivre une démarche de développement durable, en facilitant sa fabrication sur des procédés vertueux.

Le protocole d'essai comprend **deux étapes** principales, la première étape consiste à mélanger les composants, la seconde étape à former le matériau composite.

10 La première étape s'effectue à de faibles températures, d'une température ambiante à une température inférieure à 50°C. Cette étape consiste à **mélanger à sec** les composants végétaux de **renfort** soit de deux à quatre composants biosourcés cités supra. Puis de mélanger dans une **solution aqueuse** le(s) composant(s) de la **matrice** de un à trois composants biosourcés cités supra. Et de terminer cette étape de mélangeage au moyen d'un simple équipement mécanique en combinant les composants de renfort à la matrice.

15 L'utilisation d'une solution aqueuse où diluer le(s) composant(s) de la matrice venant lier le pré-mélange à sec des composants de renfort, comporte plusieurs inconvénients que nous avons solutionnés à l'échelle laboratoire. Nous voulions éviter un rapport en masse trop élevé entre **volume d'eau** et composants de renfort et de matrice. La solution aqueuse qui s'incorpore au(x) composant(s) biosourcés de la matrice impacte l'environnement et de plus oblige l'industriel à consommer de l'énergie pour le séchage du matériau composite.

20 Aussi avons-nous procédé à l'aspersion de la solution aqueuse sur le(s) composant(s) de la matrice, en lui ajoutant une quantité très limitée d'additifs afin de modifier sa mise-en-œuvre. Nous avons expérimenté des additifs ; un plastifiant biosourcé comme le glycérol et l'un de ses dérivés, ou encore un dérivé d'huile végétale, avec/ou bien un durcisseur ; type aldéhyde. Ces additifs ont pour propriétés de modifier la viscosité de la matrice, d'activer et potentialiser la réticulation du renfort et d'homogénéiser la cohésion du matériau final bio-composite. Eventuellement, la matrice peut aussi contenir un catalyseur. Et dans tous les cas, ces additifs représenteront moins de 10% en masse sèche du matériau composite.

25 En laboratoire, nous avons formulé un composite, **biosourcé à 92%**, sachant que selon les applications et le procédé, la proportion massique entre renfort / matrice [composant(s) /solution aqueuse (eau/glycérol/aldéhyde)] varie de 65/35[15/20(15/3/2)] à 85/15[7/8(6/2/0)].

30 La seconde étape s'effectue à des **températures raisonnées** en termes de consommation d'énergie, afin de poursuivre la démarche de développement durable. Le procédé industriel pour former le matériau final peut varier, du moulage en autoclave à la thermocompression ceci dans la mesure où la quantité d'énergie consommée sera raisonnablement limitée.

35 D'où l'intérêt d'une mise-en-forme à des températures de 70°C à 120°C maximum. En laboratoire, nous avons procédé au moulage de la combinaison **renfort et matrice** par **thermocompression** sur 18 éprouvettes de dimension 160x40x40 mm³. Les éprouvettes ont été compactées à 150 kgf à une température de 70°C durant 30' à 120' maximum.

40 On obtient une bonne cohésion de structure du bio-composite qui présente un aspect fini. En l'état de l'art, ce procédé de fabrication de bio-composite n'aurait pas été expérimenté.

La démarche d'écoconception du bio-composite dénommé «Bio-Matériau-Hybride» a été respectée, malgré les verrous scientifiques et technologiques, afin d'élaborer un matériau composite biosourcé à plus de 90% et dont le procédé de fabrication est raisonné.

45 L'impact environnemental mesuré par une **ACV** serait de l'ordre de 0,80 Kg à **0,50 kg CO₂** éq/m²/an à comparer au béton de chanvre 1,60 kg CO₂ ou au polystyrène à 3,20 kg CO₂.

47 La présente invention représente une avancée technologique pour les matériaux **hybrides**.

REVENDICATIONS

- 1) Matériau avancé de type composite, dont les composants principaux sont d'origine exclusivement biosourcée, caractérisé par la combinaison de deux à quatre composants de renfort naturels et renouvelables, bruts et/ou recyclés ou de leurs sous-produits, sélectionnés parmi les balles céréalières, et les fibres de coton et/ou de bois, ce renfort étant associé à un liant constitué d'un mélange de un ou deux composants de matrice, naturels et renouvelables, sélectionnés parmi les protéines de lait, de blé, et/ou les polysaccharides comme l'alginate et/ou le chitosane, soit un composite dont la proportion dans ce biomatériau hybride sera d'origine bio-sourcée, à plus de 90% en masse sèche.
- 2) Utilisation du matériau avancé d'origine majoritaire biosourcée, selon la revendication 1, dans les secteurs industriels du transport, du mobilier urbain ou du bâtiment, notamment comme isolant hygrothermique, caractérisé par la combinaison de ses composants biosourcés dont les propriétés lui confèrent, sa résistance mécanique mesurée entre 100 et 600 daN/m² en rupture à la flexion, et sa performance hygrothermique mesurée entre 900 et 1800 J/kg/K de capacité thermique.
- 3) Procédé de préparation d'un matériau avancé selon la revendication 1, qui suit un processus raisonné, respectueux de l'environnement et de la santé des opérateurs et des usagers, caractérisé par une première étape de mélange à sec des composants de renfort puis de mélange du ou des composants de matrice avec aspersion d'une solution aqueuse en faibles quantités, de 15% à 6% en masse du composite, puis de mélange mécanique du renfort avec la matrice, cette étape s'effectuant à faibles températures, inférieures à 50°C.
- 4) Procédé de préparation d'un matériau avancé selon la précédente revendication, qui suit un processus raisonné respectueux de l'environnement et de la santé des opérateurs et des usagers, caractérisé par une seconde étape de moulage, indifféremment en autoclave ou en thermocompression, à des niveaux de températures raisonnés dans une gamme de 70°C à 120°C sur une durée limitée de 30' à 120' et qui permet d'obtenir une bonne cohésion de structure du matériau composite biosourcé.

RAPPORT DE RECHERCHE

articles L.612-14, L.612-17 et R.612-53 à 69 du code de la propriété intellectuelle

OBJET DU RAPPORT DE RECHERCHE

L'I.N.P.I. annexe à chaque brevet un "RAPPORT DE RECHERCHE" citant les éléments de l'état de la technique qui peuvent être pris en considération pour apprécier la brevetabilité de l'invention, au sens des articles L. 611-11 (nouveau) et L. 611-14 (activité inventive) du code de la propriété intellectuelle. Ce rapport porte sur les revendications du brevet qui définissent l'objet de l'invention et délimitent l'étendue de la protection.

Après délivrance, l'I.N.P.I. peut, à la requête de toute personne intéressée, formuler un "AVIS DOCUMENTAIRE" sur la base des documents cités dans ce rapport de recherche et de tout autre document que le requérant souhaite voir prendre en considération.

CONDITIONS D'ÉTABLISSEMENT DU PRÉSENT RAPPORT DE RECHERCHE

- Le demandeur a présenté des observations en réponse au rapport de recherche préliminaire.
- Le demandeur a maintenu les revendications.
- Le demandeur a modifié les revendications.
- Le demandeur a modifié la description pour en éliminer les éléments qui n'étaient plus en concordance avec les nouvelles revendications.
- Les tiers ont présenté des observations après publication du rapport de recherche préliminaire.
- Un rapport de recherche préliminaire complémentaire a été établi.

DOCUMENTS CITÉS DANS LE PRÉSENT RAPPORT DE RECHERCHE

La répartition des documents entre les rubriques 1, 2 et 3 tient compte, le cas échéant, des revendications déposées en dernier lieu et/ou des observations présentées.

- Les documents énumérés à la rubrique 1 ci-après sont susceptibles d'être pris en considération pour apprécier la brevetabilité de l'invention.
- Les documents énumérés à la rubrique 2 ci-après illustrent l'arrière-plan technologique général.
- Les documents énumérés à la rubrique 3 ci-après ont été cités en cours de procédure, mais leur pertinence dépend de la validité des priorités revendiquées.
- Aucun document n'a été cité en cours de procédure.

**1. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE SUSCEPTIBLES D'ETRE PRIS EN
CONSIDERATION POUR APPRECIER LA BREVETABILITE DE L'INVENTION**

US 2011/232173 A1 (LEFEBVRE ROBERT [CA])
29 septembre 2011 (2011-09-29)

WO 2009/074723 A1 (VALTION TEKNILLINEN [FI]; LAMPINEN JOHANNA [FI])
18 juin 2009 (2009-06-18)

GB 2 491 604 A (COCA COLA CO [US])
12 décembre 2012 (2012-12-12)

WO 2011/130501 A1 (E2E MATERIALS INC [US]; RASMUSSEN ROBERT R [US])
20 octobre 2011 (2011-10-20)

**2. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE ILLUSTRANT L'ARRIERE-PLAN
TECHNOLOGIQUE GENERAL**

NEANT

**3. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE DONT LA PERTINENCE DEPEND
DE LA VALIDITE DES PRIORITES**

NEANT