



Biobased fibre **RE**inforced **PLA**stics

**Leverbaarheid 5.4.1**

## **Procesconcepten voor nabewerking, coating en herstelling**

Sirris | Wannes Lembrechts - Linde De Vriese

[wannes.lembrechts@sirris.be](mailto:wannes.lembrechts@sirris.be) - [linde.devriese@sirris.be](mailto:linde.devriese@sirris.be)

Project: HBC.2020.2567 Biogebaseerde Vezelversterkte Kunststoffen

Projectpartners: Centexbel en Sirris

Collectief Onderzoek & Ontwikkeling en Collectieve Kennisverspreiding (COOCK) gesteund door Vlaio

1 januari 2021 - 31 december 2023



**sirris** innovation  
forward

## Inhoudstafel

1	Introductie .....	5
2	Oppervlakherstellingsmethodes van thermoplastische biocomposieten .....	6
2.1	Herconsolidatie met hydraulische pers.....	6
2.2	Herconsolidatie met kleinere pneumatische pers.....	8
2.3	Heropsmelten met lokale warmte en druk door metalen cilinder .....	11
2.4	Heropsmelten met lichte druk door spiegelglas .....	11
2.5	Conclusie herstellingstesten.....	12
3	Procesconcepten voor randafwerking biocomposieten .....	13
4	Het potentieel van de toevoeging van biocoatings op biocomposieten: projectresultaten .....	15
4.1	Testreeks 1.....	16
4.1.1	Hardheid en glans.....	17
4.1.2	Krasbestendigheid.....	18
4.1.3	Waterbestendigheid .....	19
4.1.4	Verouderingstesten onder blootstelling aan UV .....	20
4.1.5	Conclusie coatingtesten testreeks 1.....	22
4.2	Testreeks 2.....	22
4.2.1	Oppervlakbehandeling en diktevariatie in bio-epoxy coatings .....	23
4.2.2	Krastesten .....	25
4.2.3	UV- en waterbestendigheid .....	25
4.2.4	Conclusie coatingtesten testreeks 2 .....	29
5	Conclusie .....	30
6	Referenties .....	31

## Lijst met figuren

Figuur 1: Aanbrenging van krasbeschadiging met krasmes.....	6
Figuur 2: Bovenaan 'voor' en onderaan 'na', herconsolidatie van krasbeschadiging met hydraulische pers met persdruk van 10 bar, maximale perstemperatuur van 180°C en 1 minuut op maximale perstemperatuur. ....	7
Figuur 3: Bovenaan 'voor', onderaan links 'na' en onderaan rechts 'na + vergroot'. Herconsolidatie van krasbeschadiging met hydraulische pers met persdruk van 1,5 bar, maximale perstemperatuur van 180°C en 5 minuten op maximale perstemperatuur.....	8
Figuur 4: De zelfgemaakte opstelling in het BREPLA project voor de optimale werking van de pneumatische pers.....	9
Figuur 5: Startbeschadiging op de non-woven hennep-PP plaatjes voor de herstelling met de pneumatische pers.....	10
Figuur 6: Overzicht van herstellmethode, -parameters en het resultaat na herstelling met de pneumatische pers .....	10
Figuur 7: Resultaat van een herstelltest van een deukbeschadiging met de pneumatische pers, links = 'voor'; rechts = 'na'.....	11
Figuur 8: Opstelling en resultaten van een lokale herstelling door de druk van een warme cilinder.....	11
Figuur 9: Manuele herstellingsmethode met spiegellas (bovenaan) en het resultaat (onderaan).....	12
Figuur 10: De gebruikte hars-verharder combinaties voor de 7 coating samples in testreeks 1 .....	17
Figuur 11: Resultaten van de hardheid en glansmetingen voor de gecoate vlas-epoxy en vlas-PLA samples. Hardheid is uitgedrukt in Shore D, glans in arbitraire eenheden t.o.v. interne referentie . Standaardvariatie op hardheidswaarde $\pm 2$ , spreiding op glanswaarden $\pm 3$ ....	18
Figuur 12: Resultaten van de krasbestendigheidsmetingen voor de gecoate vlas-PLA samples .....	19
Figuur 13: Resultaten van de krasbestendigheidsmetingen voor de gecoate vlas-epoxy samples .....	19
Figuur 14: Statische watercontacthoeken gemeten op gecoate vlas-epoxy en vlas-PLA samples. Standaardvariatie op statische watercontacthoeken $\pm 3$ .....	20
Figuur 15: Resultaten van de Karsten-Sheen waterkolom test voor de gecoate en originele samples, voor en na de krastest.....	20
Figuur 16: Resultaten van originele en gecoate vlas-PLA plaatjes na QUV-testcyclus van 250 uur .....	21
Figuur 17: Resultaten van originele en gecoate vlas-epoxy plaatjes na QUV-testcyclus van 250 uur .....	22
Figuur 18: Formulatie van bio-epoxy coatings getest tijdens testreeks 2 .....	23
Figuur 19: Voorbeeld van coatingonthechting zonder voorbehandeling voor bio-epoxy sample 1 bij een coatingdikte van 140 $\mu\text{m}$ , 300 $\mu\text{m}$ en 500 $\mu\text{m}$ .....	23
Figuur 20: Bio-epoxy coatings sample 1 (links) en 2 (rechts) met 140 $\mu\text{m}$ coatingdikte .....	24
Figuur 21: Bio-epoxy coatings sample 1 (links) en 2 (rechts) met 300 $\mu\text{m}$ coatingdikte .....	24
Figuur 22: Bio-epoxy coating sample 3 met 500 $\mu\text{m}$ coatingdikte .....	24
Figuur 23: Resultaat krastesten klassieke biocoatings lijnzaadolie en wax.....	25
Figuur 24: Resultaat krastesten bio-epoxy coatings; NW = non-woven, W = weefsel, S1 = bio-epoxy sample 1, S2 = bio-epoxy sample 2, corona = voorbehandeld met corona straling in plaats van opgeschuurd .....	25
Figuur 25: Uitzicht van de plaatjes met klassieke biocoating na een QUV-cyclus; links = sample met lijnzaadolie coating, rechts = sample met wax coating .....	26

Figuur 26: Uitzicht van de plaatjes met bio-epoxy coating na een QUV-cyclus; links = sample 1, rechts = sample 2 ..... 27

Figuur 27: Contacthoekmetingen, in °, op de biocoatings voor en na QUV-cyclus; NW = non-woven, W = weefsel, UV = na UV-belasting, L = lijnzaadolie coating, Wx = wax coating, S1 = bio-epoxy coating sample 1, S2 = bio-epoxy coating sample 2, 500 = coatingdikte van 500 µm, Corona = corona voorbehandeling ipv opschuren ..... 28

Figuur 28: Glansmetingen op de biocoatings voor en na QUV-cyclus; NW = non-woven, W = weefsel, UV = na UV-belasting, L = lijnzaadolie coating, Wx = wax coating, S1 = bio-epoxy coating sample 1, S2 = bio-epoxy coating sample 2, 500 = coatingdikte van 500 µm, Corona = corona voorbehandeling ipv. opschuren, glans in arbitraire eenheden t.o.v. interne referentie..... 28

## 1 Introductie

Dit verslag gaat dieper in op 3 thema's die relevant zijn bij de afwerking van biocomposieten producten: oppervlakte herstelling, randafwerkingsmethodes en de toevoeging van biocoatings.

Hoofdstuk 2 focust op oppervlakte herstelling bij thermoplastische (bio)composieten. Een groot voordeel van deze materialen is namelijk dat het smeltbaar blijft en tijdens de smeltfase vervormbaar is onder druk. Naast de mogelijkheid van vervorming, zorgt de opsmeltbaarheid ook voor de mogelijkheid om defecten in de polymeermatrix te herstellen. Dit verslag beschrijft hoe in het BREPLA-project de oppervlaktebeschadigingen zijn aangebracht, welke herstellmethodes getest zijn en wat dit als resultaat oplevert.

Hoofdstuk 3 geeft hiernaast een overzicht rond randafwerkingstechnieken. Een voordeel van het gebruik van (bio)composieten is dat producten vaker op maat gemaakt zijn en uit grote geïntegreerde delen gemaakt kunnen worden. Finale afwerkingshandelingen zullen echter steeds nodig blijven.

Afhankelijk van de toepassing is voor biocomposieten soms een goede vocht-, UV-, of krasbestendigheid vereist. Vanwege de hydrofiele eigenschappen van plantvezels, is het nuttig om biocomposieten in vochtige omstandigheden met een coating af te schermen zodat ook eventueel vrij liggende vezels aan het oppervlak beschermd worden. Om het natuurlijke karakter van biocomposieten te behouden, zijn in dit project demonstratietesten uitgevoerd om het effect van biogebaseerde polymeercoatings op biocomposieten te onderzoeken. Hierbij zijn verschillende vergelijkingen gemaakt:

- In een eerste testreeks zijn 6 biocoatings en één referentie coating aangebracht op vlas-PLA en vlas-epoxy composieten met een weefsel vezelstructuur. Deze zijn gekarakteriseerd met behulp van metingen op glans, hardheid, waterbestendigheid en UV-bestendigheid.
- Een tweede testreeks bouwt hierop verder en test 2 bio-epoxy coatings en 2 conventionele biocoatings op vlas-PLA plaatjes op de kras-, water- en UV-bestendigheid. In de tweede testreeks is een vergelijking gemaakt tussen een weefsel of non woven vezelstructuur van de plaatjes en wordt een optimalisatie stap gemaakt om de beste coatingdikte en oppervlaktevoorbereiding te bepalen.

Hoofdstuk 4 toont de resultaten van beide testreeksen.

## 2 Oppervlakherstellingsmethodes van thermoplastische biocomposieten

Een groot voordeel van thermoplastische (bio)composieten is dat het materiaal smeltbaar blijft en tijdens de smeltfase vervormbaar is onder druk. Naast de mogelijkheid van vervorming, zorgt de opsmeltbaarheid ook voor de mogelijkheid om defecten in de polymeermatrix te herstellen. Zo heeft dit project de mogelijkheden rond herstelling van oppervlaktebeschadiging getest. Dit hoofdstuk beschrijft hoe in dit project de oppervlaktebeschadigingen zijn aangebracht, welke herstellmethoden getest zijn en wat dit als resultaat oplevert. De hersteltesten die in dit project zijn uitgevoerd, kunnen onderverdeeld worden in 4 categorieën:

- Herconsolidatie in hydraulische pers (15 bar - 10 bar - 2 bar)
- Herconsolidatie in pneumatische pers (5 bar - 2,2 bar)
- Heropsmelten met lichte druk door spiegellas
- Heropsmelten met lokale druk door metalen cilinder

Als testmateriaal is steeds geconsolideerd non-woven vlas-PLA of non-woven hennep-PP plaatmateriaal gebruikt. Alle hersteltechnieken zijn uitgetest om oppervlaktekrassen te verwijderen. Deze krassen zijn manueel aangebracht met een krasmes, getoond door Figuur 1. Met één techniek is ook de herstelling van ingedeukt plaatmateriaal getest.



*Figuur 1: Aanbrenging van krasbeschadiging met krasmes*

### 2.1 Herconsolidatie met hydraulische pers

Een techniek om krassen te verwijderen is de platen volledig te herconsolideren onder hoge druk en temperatuur van een hydraulische pers. Deze testen gebruikten steeds geconsolideerde non-woven vlas-PLA platen waarop krassen zijn aangebracht. Deze bekraste platen worden tijdens de herstellingstest onder druk opgewarmd en afgekoeld in een hydraulische pers.

Tijdens de testen wordt het materiaal steeds samengeperst onder een bepaalde insteldruk, opgewarmd tot een maximale temperatuur, enkele minuten op deze temperatuur gehouden en wordt het geheel vervolgens afgekoeld terwijl de druk aanhoudt.

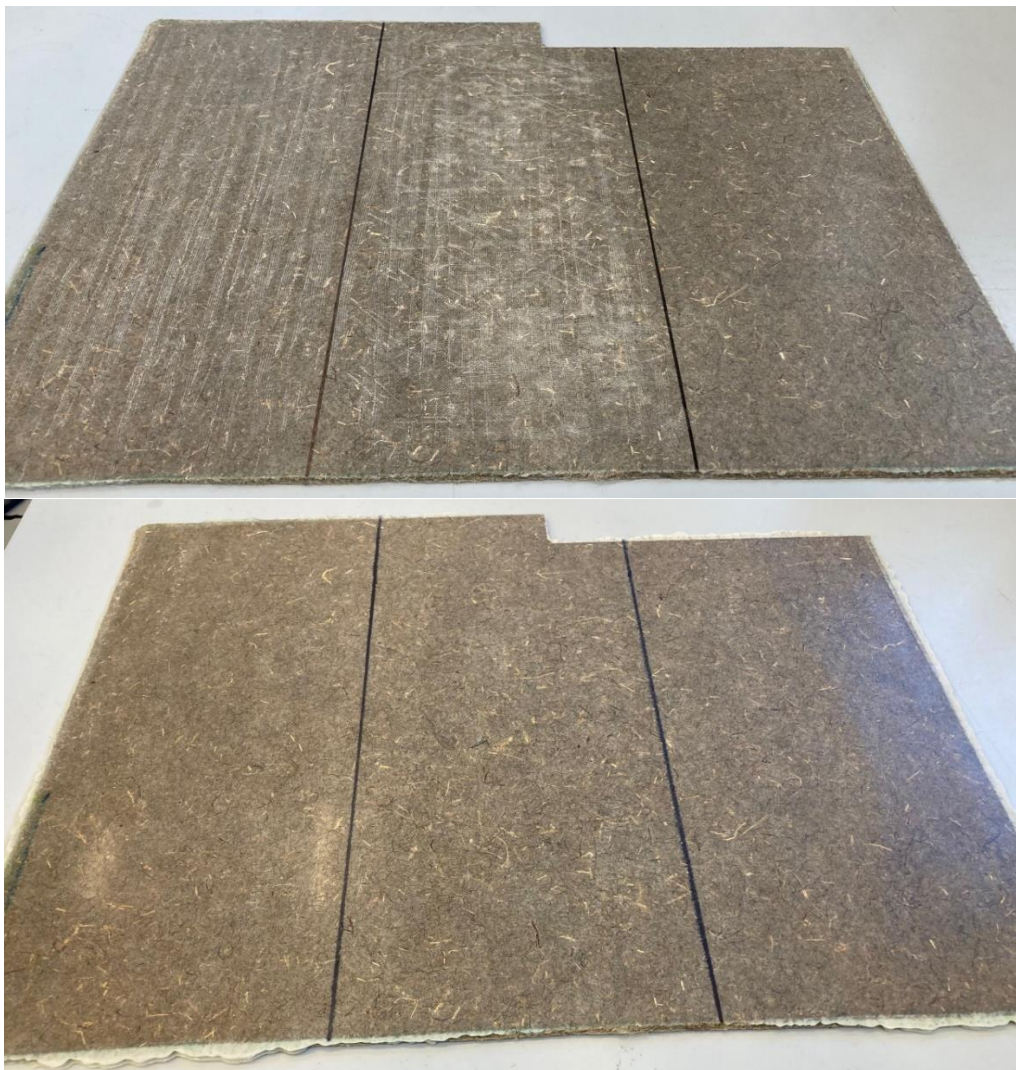
Tijdens de eerste test zijn als persparameters voor de herstelling dezelfde persparameters gebruikt als voor de consolidatie van het oorspronkelijk plaatmateriaal:

- Insteldruk van 15 bar
- Maximale temperatuur van 180 °C
- 5 minuten op maximale temperatuur

Het resultaat hiervan was een plaat met veel PLA-uitvloeit aan de randen, zodat de plaat geen goede kwaliteit meer had. Hierdoor werden enkele persparameters verlaagd:

- Insteldruk van 10 bar
- Maximale temperatuur van 180 °C
- 1 minuut op maximale temperatuur

Deze persparameters leveren wel een resultaat met goede kwaliteit op. Figuur 2 toont het plaatmateriaal voor en na het herstelproces. Op het linkerdeel zijn enkel parallelle krasen gemaakt, in het midden zijn de krasen gekruist en in het rechterdeel zijn geen krasen gemaakt. Na het herstelproces zijn alle krasen verdwenen. Er is geen verschil meer te zien tussen de drie zones.



*Figuur 2: Bovenaan 'voor' en onderaan 'na', herconsolidatie van krasbeschadiging met hydraulische pers met persdruk van 10 bar, maximale perstemperatuur van 180°C en 1 minuut op maximale perstemperatuur.*

Om ook het potentieel te testen voor herconsolidatie in kleinere persen, is in een hydraulische pers ook dezelfde hersteltest uitgevoerd op lagere druk:

- Insteldruk van 1,5 bar
- Maximale temperatuur van 180 °C
- 5 minuten op maximale temperatuur

Figuur 3 toont het resultaat van deze test. Een gelijkaardige herstelling en evolutie als in Figuur 2 is te zien. Op het oppervlak zijn echter nog enkele kleine krassen te zien. De oppervlaktekwaliteit van het plaatje is sterk verbeterd, maar de krassen zijn niet volledig verdwenen.



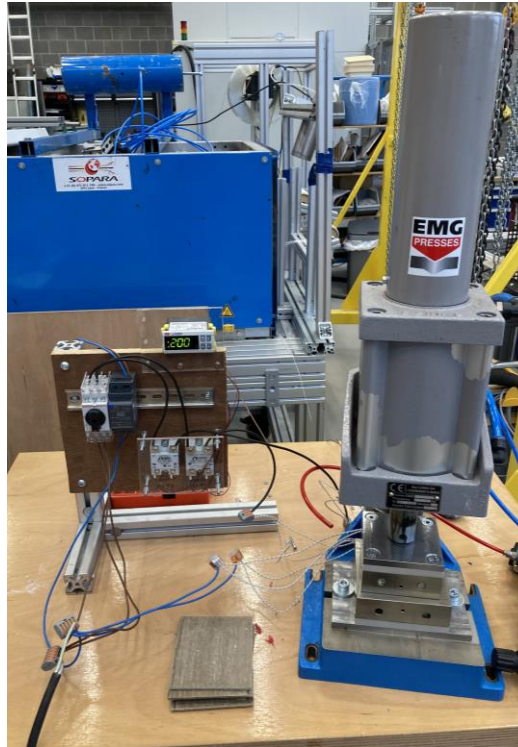
Figuur 3: Bovenaan 'voor', onderaan links 'na' en onderaan rechts 'na + vergroot'. Herconsolidatie van krasbeschadiging met hydraulische pers met persdruk van 1,5 bar, maximale perstemperatuur van 180°C en 5 minuten op maximale perstemperatuur.

## 2.2 Herconsolidatie met kleinere pneumatische pers

Naast reparatietesten met een hydraulische pers, zijn ook testen uitgevoerd om bekrast plaatmateriaal te herconsolideren met een pneumatische pers. Figuur 4 toont de opstelling die gebruikt is voor de uitvoering van deze hersteltesten. Deze pneumatische pers is kleiner



en heeft een vlak persoppervlak van 10 x 10 cm. Dit heeft als voordeel dat de opstelling flexibeler is dan een hydraulische pers, het potentieel heeft om meer lokaal reparaties uit te voeren en deze pers ook nauwkeuriger in te stellen is op een relatief lage druk (krachtrange: 220 – 800 kgf). Non-woven hennep-PP plaatmateriaal is steeds gebruikt als materiaal voor deze testen.



*Figuur 4: De zelfgemaakte opstelling in het BREPLA project voor de optimale werking van de pneumatische pers*

Voor deze hersteltest is een gelijkaardige krasbeschadiging aangebracht zoals de krasbeschadiging op Figuur 1 en ook voor sectie 2.1 werd gebruikt. Figuur 5 toont hoe de startbeschadiging eruitziet op de plaatjes van deze sectie. Om deze krasbeschadiging te herstellen zijn 3 combinaties van testparameters gebruikt. Figuur 6 toont de testparameters, testmethode en het resultaat hiervan.

De linker kolom toont het resultaat wanneer de herstelling volledig in de pers wordt uitgevoerd bij een opwarmtemperatuur van 200°C, persdruk van 5 bar en wanneer het geheel 5 minuten op temperatuur wordt gehouden voor het koelen. Na deze herstelling zijn de krassen op het oppervlak volledig weg. Wel is een duidelijke afdruk te zien aan de rand van de persmal.

Om deze afdruk na herstelling te verminderen, zijn ook andere persparameters uitgetest, te zien op de middelste kolom van Figuur 6. Zo is, bij een persdruk van 2,2 bar, opwarmtemperatuur van 180°C en een tijd op temperatuur van 3 minuten, te zien dat de oppervlaktekrassen volledig verdwijnen en de randeffecten van de herstelling verminderen.

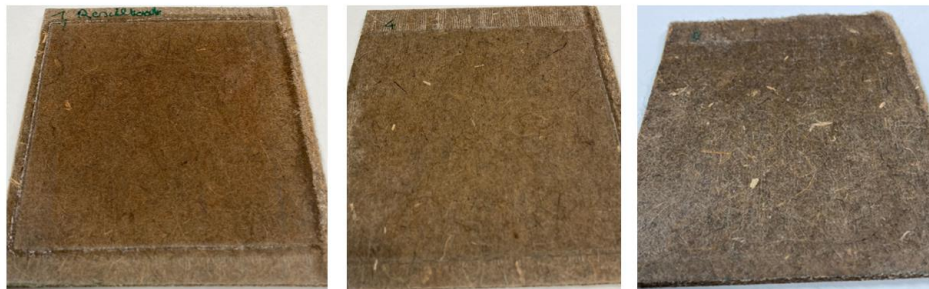
Een nadeel van bovenstaande methodes is dat de persplaten tijdens de herstelling moeten afkoelen alvorens deze terug kunnen openen en het sample volledig hersteld is. Hierdoor is ook het potentieel getest om een opgesmolten plaat te persen in een relatief koude pers, het resultaat is te zien op de rechter kolom van Figuur 6. Het gekrast sample werd tijdens deze test 20 min opgewarmd boven smeltemperatuur in een oven op 200 °C en vervolgens herperst met 5 bar persdruk in een pers met de persplaten op 80 °C. Deze methode slaagt er niet in om de krassen volledig te herstellen. Ook bleef het oppervlak van het plaatje er

ruw uitzien, terwijl het oorspronkelijke plaatje en andere herstellde plaatjes van de eerder geteste parameters een gladde oppervlaktezone bevatten.



Figuur 5: Startbeschadiging op de non-woven hennep-PP plaatjes voor de herstelling met de pneumatische pers

Methode:	In pers	In pers	In oven - pers
Temperatuur:	200°C	180°C	200°C – 80°C
Tijd op temp.:	5 min	3 min	20 min – 1 min
Druk:	5 bar	2,2 bar	5 bar
Resultaat:	Geen krassen	Geen krassen	Krassen + ruw opp.



Figuur 6: Overzicht van herstellmethode, -parameters en het resultaat na herstelling met de pneumatische pers

Uit de vergelijking van bovenstaande resultaat blijkt dat volgende persparameters het beste resultaat opleveren (middelste kolom van Figuur 6):

- Insteldruk van 2,2 bar
- Maximale temperatuur van 180 °C
- 3 minuten op maximale temperatuur

Als extra test is met deze persparameters ook de herstelling van een deukbeschadiging getest. Figuur 7 toont hiervan aan de linkerkant het beschadigde plaatje voor de test en aan de rechterkant het herstellde plaatje. Het resultaat toont dat de deuken volledig uit het plaatje zijn verdwenen en het plaatje dus hersteld is. Een opmerking hierbij is dat deze herstellmethodes enkel voor herstelling van de polymeermatrix zorgen. Wanneer ook vezels beschadigd zijn, gaan deze zich niet herstellen.



Figuur 7: Resultaat van een hersteltest van een deukbeschadiging met de pneumatische pers, links = 'voor'; rechts = 'na'

### 2.3 Heropsmelten met lokale warmte en druk door metalen cilinder

Naast herstellingsmethodes via een pers zijn ook alternatieve herstellingsmethodes zonder een pers onderzocht binnen dit project. Zo is het principe getest om een gekrast oppervlak te herstellen door gebruik te maken van een verwarmde cilinder (diameter 50 mm) met hierop een massa van 5 kg voor extra druk en deze cilinder van het oppervlak te verwijderen als deze is afgekoeld. Dit principe is getest op een non-woven hennep-PP plaatje. Figuur 8 toont de opstelling en resultaten.

De cilinder werd steeds 20 minuten in een oven voorverwarmd. De plaatsing van de cilinder op 250°C op het gekrast oppervlak geeft geen herstellingseffect. Wanneer de cilinder wordt opgewarmd op 300 °C, heeft dit wel lokaal opsmelten en herstelling als gevolg. Het oppervlak van de herstelde zone neemt volledig de oppervlaktetextuur aan van de cilinder. Voor een glad oppervlak te bereiken is het dus belangrijk om het contactvlak van de warme cilinder af te werken tot een hoge oppervlakte kwaliteit.



Figuur 8: Opstelling en resultaten van een lokale herstelling door de druk van een warme cilinder

### 2.4 Heropsmelten met lichte druk door spiegellas

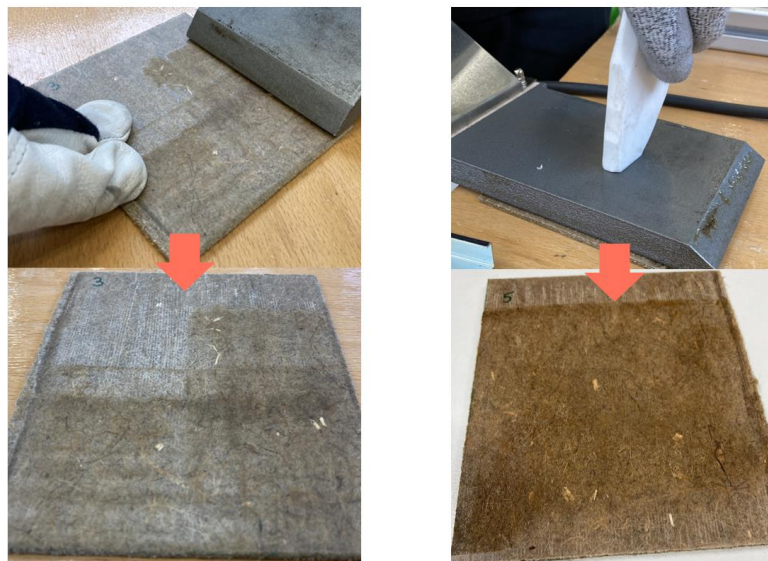
De laatste herstellingstest dat dit verslag overloopt is de manuele herstelling waarbij een opgewarmde spiegellas (200 °C) met lichte manuele druk over een gekrast oppervlak

beweegt. Het samples waarop de testen zijn uitgevoerd bestaan uit non-woven hennep-PP plaatmateriaal.

Hierbij zijn twee bewegingen met de spiegellas getest. Figuur 9 toont beide methodes en hun resultaat. Links op Figuur 9 is te zien wat het effect is wanneer een warme spiegellas met lichte druk over het oppervlak glijdt. Bij de methode aan de rechterkant van Figuur 9 wordt de spiegellas vlak op het gekrast plaatje gelegd en manueel aangeduwd.

Beide methodes leveren een gelijkaardig resultaat op. De krassen verdwijnen deels, maar vanwege het opsmelten zonder hoge druk te zetten treedt lokale deconsolidatie op. Vanwege de lage druk kunnen tijdens deze methode de vezels aan het oppervlak loskomen van de opgesmolten polymeermatrix en neemt de ruwheid van het oppervlak toe. Het hangt af van de beoogde oppervlakteruwheid van de toepassing of deze herstellingsmethode kan gebruikt worden of niet.

Opwarmen met spiegellas (200°C) + manuele druk



Figuur 9: Manuele herstellingsmethode met spiegellas (bovenaan) en het resultaat (onderaan)

## 2.5 Conclusie herstellingstesten

Dit hoofdstuk toont dat het mogelijk is om oppervlaktedefecten van thermoplastische biocomposieten te herstellen. Om tot een goede herstelling te komen is het belangrijk om het thermoplastisch biocomposiet materiaal steeds op te warmen tot boven de smelttemperatuur van de polymeermatrix en om druk uit te oefenen (2-5 bar) tijdens de opwarming en afkoeling van het materiaal. Deze druk mag niet te hoog zijn, anders zijn duidelijke randeffecten te zien aan de rand van de herstellingszone. Randeffecten zijn echter moeilijk volledig te vermijden. Voor een goede herstelling heeft de reparatiemal best een zo goed mogelijke oppervlaktekwaliteit, het herstelde oppervlak neemt deze kwaliteit namelijk over.

In het project is het gelukt om voor een gekrast oppervlak een goede herstellingskwaliteit met glad oppervlak te bereiken via een hydraulische pers, pneumatische pers en met een warme cilinder onder extra druk. Wat de geschikte herstellingsmethode is, hangt af van de beoogde oppervlakteruwheid, geometrie en grootte van het herstellingsoppervlak van de toepassing.

### 3 Procesconcepten voor randafwerking biocomposieten

Een voordeel van het gebruik van (bio)composieten is dat producten vaker op maat gemaakt zijn en uit grote geïntegreerde delen gemaakt kunnen worden. Finale afwerkingshandelingen zullen echter steeds nodig blijven.

Klassieke afwerkingsmethodes zijn zagen of frezen. Een voordeel bij deze technieken voor biocomposieten is dat plantvezels minder abrasief zijn dan synthetische glas- of koolstofvezels. Hiernaast zijn voor (bio)composieten ook processen zoals (abrasie) waterjet snijden en lasertechnologie mogelijk.

Voor de afwerking van de demonstratoren in het BREPLA-project is gebruik gemaakt van de klassieke mechanische processen:

- Knippen
- Snijden
- Zagen (cirkelzaag, diamantzaag, lintzaag)
- Frezen

Deze processen zijn zowel gebruikt voor de afwerking van thermoplastische als thermohardende biocomposieten. Voor thermoplastische composieten is het echter wel belangrijk om te zorgen dat de thermoplastische matrix niet opsmelt. Hiervoor kan koelvloeistof toegevoegd worden tijdens het snijden, al is dit voor kleine hoeveelheden of voldoende afkoeling tussendoor niet altijd noodzakelijk.

Belangrijke procesparameters voor de klassieke mechanische processen zijn de invoersnelheid en de geometrie van de tool. [1] Eén van de grootste nadelen van deze processen op composieten zijn de slechte oppervlaktekwaliteit door de heterogene eigenschappen van composiet materialen, met een hoge oppervlakteruwheid tot gevolg. Als resultaat van de afschuifkrachten tijdens het snijproces is er steeds een deel van de plaat dat uitrafelt, dit kan delaminatie veroorzaken. Hierdoor moet tijdens het snijden hoge afschuifkrachten zo goed mogelijk vermeden worden. Wat de ideale procesparameters voor deze mechanische afwerkingsprocessen zijn, moet proces per proces, materiaal per materiaal en product per product bekeken worden met mogelijkheid tot optimalisatie. [2]

Naast deze klassieke processen zijn ook (abrasie) waterjet snijden en lasersnijden mogelijk voor biocomposieten. Een belangrijk voordeel van deze technieken is dat er geen rechtstreekse aanraking met een snijtool en hierdoor minder slijtage plaatsvindt. Hierdoor vinden lagere snijkrachten plaats en verkleint de kans op delaminatie. [2]

Belangrijke procesparameters voor het waterjet snijden zijn debiet, snelheid, druk binnen de spuitkop, afstand tot het voorwerp en eventuele abrasieve korrels die zijn toegevoegd om de snijkwaliteit te verbeteren. Tijdens het waterjet snijden wordt geprobeerd om oppervlakteruwheid, materiaalverwijderingssnelheid en kerfhoek te optimaliseren door de input parameters aan te passen. Zoals ook de andere afwerkingstechnieken is de kwaliteit van het waterjet snijden steeds case per case afhankelijk. Over het algemeen kan wel gesteld worden dat de oppervlakteruwheid en risico op delaminatie toe nemen als de bewegingssnelheid verhoogt. Ook neemt de ruwheid steeds toe aan de onderkant van de doorsnede. [2], [3]

Ook is het mogelijk om lasersnijden te gebruiken voor de afwerking van biocomposieten. Hierbij wordt het materiaal gesneden met een lichtstraal aan hoge intensiteit, typisch met een golflengte in de infrarood zone. Het materiaal warmt lokaal op en smelt of degradeert, zo smelten thermoplastische materialen en degraderen thermohardende polymeren. Een algemeen nadeel van deze techniek is dat de afwerkbare plaatdikte beperkt is tegenover de andere snijtechnieken.

Bij het lasersnijden zijn laser power, snijsnelheid, gas druk en positie van het focus punt de belangrijkste input parameters. Hiernaast kunnen de lasergolf frequentie, type laser en golf type (puls of continue) ook variëren. Algemene trends in invloed van procesparameters zijn moeilijk aan te duiden omdat de resultaten heel materiaal en product afhankelijk zijn. Zo zijn de snijparameters voor biocomposieten bijvoorbeeld heel anders tegenover synthetische composieten vanwege een verschil in thermische eigenschappen. [2]

## **Conclusie nabewerkingstechnieken voor biocomposieten**

Binnen het BREPLA-project is bij de afwerking van de demonstratoren gebruik gemaakt van klassieke mechanische processen: knippen, snijden, zagen en frezen. Naast deze klassieke processen kunnen ook (abrasie) waterjet snijden en lasersnijden gebruikt worden met als voordeel minder slijtage en een kleinere kans op delaminatie.

Wat de ideale procesparameters voor deze afwerkingsprocessen zijn, varieert sterk en moet proces per proces, materiaal per materiaal en product per product bekeken worden met mogelijkheid tot optimalisatie. Over het algemeen zorgen hoge snijkrachten voor een hogere kans op delaminatie en een hogere oppervlakteruwheid. De krachten dalen typisch als de horizontale bewegingssnelheid afneemt, al zorgt dit rechtstreeks voor een productiviteitsverlies. Het is belangrijk hierin een goede afweging te maken.

## 4 Het potentieel van de toevoeging van biocoatings op biocomposieten: projectresultaten

Afhankelijk van de toepassing is voor biocomposieten soms een goede vocht-, UV-, of krasbestendigheid vereist. Vanwege bijvoorbeeld de hydrofiële eigenschappen van plantvezels, is het nuttig om biocomposieten in vochtige omstandigheden met een coating af te schermen zodat ook eventueel vrij liggende vezels aan het oppervlak beschermd worden en bv. geen kanaal kunnen vormen voor penetratie van water welke zwelling en mechanische degradatie van het biocomposiet zou veroorzaken. Om het natuurlijke karakter van biocomposieten te behouden, zijn in dit project demonstratietesten uitgevoerd om het effect van biogebaseerde polymeercoatings op biocomposieten te onderzoeken. Hierbij zijn verschillende vergelijkingen gemaakt.

Tijdens een eerste testreeks zijn 6 biocoatings en één referentie coating aangebracht op vlas-PLA en vlas-epoxy composieten met een weefsel vezelstructuur. Deze zijn gekarakteriseerd met behulp van metingen op glans, hardheid, waterbestendigheid en UV-bestendigheid.

De tweede testreeks bouwt hierop verder en test 2 bio-epoxy coatings en 2 conventionele biocoatings op vlas-PLA plaatjes op de kras-, water- en UV-bestendigheid. In de tweede testreeks is een vergelijking gemaakt tussen een weefsel of non woven vezelstructuur van de plaatjes en wordt een optimalisatie stap gemaakt om de beste coatingdikte en oppervlaktevoorbehandeling te bepalen.

De resultaten van dit hoofdstuk zijn mogelijk gemaakt door Sirris-medewerkers met een expertise in (bio)coatings: Pieter Samyn ([pieter.samyn@sirris.be](mailto:pieter.samyn@sirris.be)) en Arne Derluyn ([arne.derluyn@sirris.be](mailto:arne.derluyn@sirris.be)). Selectie van de harsen voor coatings zijn gebaseerd op ervaringen uit het COOCK-BioCoat project, waar een ruimere screening van mogelijke coatings werd gemaakt. Verdere toelichting en informatie over gebruikte coatings kan gevonden worden, in:

- P. Samyn, J. Bosmans, P. Cosemans, "Role of biobased and fossil-based reactive diluents in epoxy coatings with amine and phenalkamine crosslinker", *Polymers* 15 (2023), 3856.
- P. Samyn, J. Bosmans, P. Cosemans, "Benchmark study of epoxy coatings with bio-based phenalkamine versus fossil amine crosslinkers", *Molecules* 28 (2023), 4259.
- W. Lembrechts, L. De Vriese, P. Cosemans, P. Samyn, "Mechanical performance of protective epoxy coatings with bio-based ingredients for flax-fiber composites", *Engineering Proceedings* 56 (2023), 39.

## 4.1 Testreeks 1

Tijdens de eerste testreeks zijn 6 bio-epoxy coatings en 1 referentie coating getest op vlas-PLA en vlas-epoxy plaatjes met een weefselstructuur. De coatings zijn aangebracht volgens de blade-coating techniek met een ingestelde dikte van 500 µm. Alle biocomposiet plaatjes zijn steeds opgeschuurd met P240 schuurpapier. Na aanbrenging zijn luchtballen verwijderd met een vlam.

De 7 coatings zijn opgebouwd uit verschillende commercieel beschikbare harsen en verharders afkomstig van verschillende materiaalleveranciers. Figuur 10 toont de gebruikte combinaties, verhouding en sample nummering die verder zal gebruikt worden in de beschrijving van de resultaten. Deze coatings en de hars-verharder verhoudingen zijn het resultaat van een screening en optimalisatie uit het eerdere COOCK Biocoat project.

Voor sample 1, 2 en 3 is 100% bio-epoxy hars gebruikt van leverancier Sicomin. Deze samples verschillen in het gebruik van de verharder. Zo is aan sample 1 een Eco fast (niet-bio) verharder toegevoegd. Aan sample 2 is de 100% bio verharder phenalkamine toegevoegd en aan sample 3 is naast phenalkamine ook 100% bio triglycidyl ether toegevoegd als diluent om de viscositeit van de coating te verlagen en bijgevolg applicatie te verbeteren. De invloed van een diluent op mechanische eigenschappen levert hogere ductiliteit en mogelijk betere slijtvastheid. Een trifunctioneel diluent kan intrinsiek de crosslinking densiteit en daardoor ook sterkte van de coating verbeteren afhankelijk van de combinatie met verharder.

De coatings van sample 4 en 5 zijn opgebouwd uit 1070 ECO hars en 1074 hardener van leverancier Scabro/Resoltech. Deze componenten zijn niet biogebaseerd maar wel geproduceerd zonder solventen. Aan sample 5 is ook diluent bio triglycidyl ether toegevoegd.

Sample 6 en 7 dienen tijdens deze testen als referentie coatings en zijn opgebouwd uit niet-biogebaseerd DGEBA hars. Waarbij voor sample 6 een fossiele verharder en voor sample 7 phenalkamine is gebruikt voor de uithardstap.

Het biogehalte van deze 7 samples bedraagt:

Sample 1: 71 gew% biogebaseerd: bio-based hars + partieel bio-based verharder (phenalkamine)

Sample 2: 100 gew% biogebaseerd: bio-based hars + bio-based verharder (phenalkamine)

Sample 3: 100 gew% biogebaseerd: bio-based hars + bio-based diluent + bio-based verharder (phenalkamine)

Sample 4: 0 gew% biogebaseerd: fossiele hars + fossiele verharder

Sample 5: 23 gew% biogebaseerd: fossiele hars + fossiele verharder + bio-based diluent

Sample 6: 0 gew% biogebaseerd: fossiele hars + fossiele verharder

Sample 7: 38 gew% biogebaseerd: fossiele hars + bio-based verharder



### Sicomin

	Surf Clear ECO (resin)	ECO Fast (hardener)	bio triglycidyl ether (diluent)	phenalkamine
sample 1	22,5	9,225		
sample 2	15			7,875
sample 3	15		7,5	10,35

### Scabro/Resoltech

	1070 ECO (resin)	1074 Hardener (hardener)	bio triglycidyl ether (diluent)
sample 4	15	5,25	
sample 5	15	4,8	6

### Referenties

	DGEBA	Fossil hardener	phenalkamine
sample 6	15	7,5	
sample 7	15		9,375

Figuur 10: De gebruikte hars-verharder combinaties voor de 7 coating samples in testreeks 1

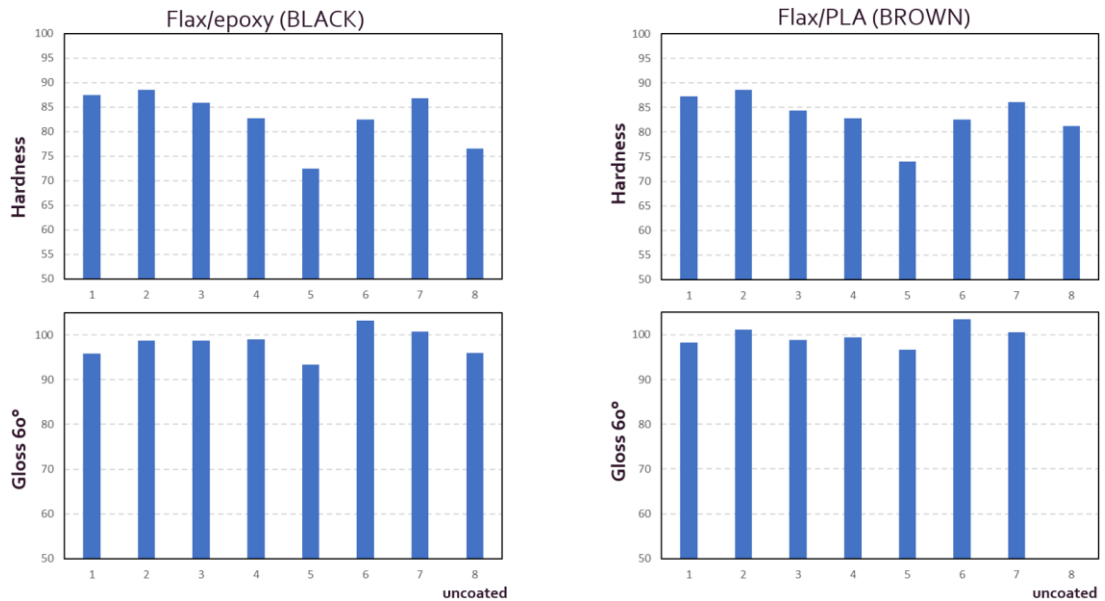
#### 4.1.1 Hardheid en glans

Om de biocoatings te karakteriseren zijn in dit project hardheid- en glansmetingen uitgevoerd. De hardheidsmetingen worden uitgevoerd volgens ASTM D2240 met een manuele Shore D microhardheidsmeter met gestandaardiseerde tip uit gehard staal (30°, 0.1 mm radius). De glansmetingen worden uitgevoerd volgens ISO 2813 met een microtriglossmeter (BYK-Gardenerd) onder een invalshoek van het licht van 60°.

Figuur 11 toont de resultaten van hardheid- en glansmetingen op de gecoate samples samen met het resultaat van een ongecoat sample voor vlas-epoxy en vlas-PLA. De glansmeting van het ongecoat sample vlas-PLA ontbreekt.

Zowel voor de hardheid als voor de glans hebben de resultaten voor vlas-epoxy en vlas-PLA dezelfde trend en variatie bij coating verandering. Dit toont dat de metingen de intrinsieke eigenschappen van de coating weerspiegelen en niet beïnvloed zijn door het plaatmateriaal. De hardheidsmetingen tonen dat een hogere hardheid vergeleken met het originele substraat bekomen wordt voor de meeste types coating, waarbij de toevoeging van diluent (bij sample 3 en 5) de hardheid doet afnemen tegenover dezelfde hars-verharder combinatie zonder diluent (sample 2 en 4). Buiten sample 5 vertoont elk gecoat sample een verhoogde hardheid tegenover het ongecoat sample. Van de biocoatings toont sample 2 de hoogste hardheid. Deze hardheid is ook hoger dan het referentie sample met een fossiele coating zonder diluent (sample 6). Door selectie van het diluent met een geschikte biogebaseerde verharder (i.e., phenalkamine t.o.v. fossiel amine) een voldoende hoge hardheid bereikt die hoger ligt dan het basissubstraat. Het effect van het diluent op hardheidseigenschappen kan dubbel zijn, waarbij enerzijds (i) een aantal lineaire ketens in de epoxystructuur een verzachtend effect hebben en het materiaal meer flexibel maken, en (ii) door de hoge reactiviteit van trifunctionele diluenten ook de crosslinking zal toenemen. Eerdere ervaringen toonden dat het effect van diluent keuze ook te relateren is met de hogere reactiviteit van de biogebaseerde binder die aanleiding heeft tot een hoge graad aan crosslinking.

Uit de glansmetingen blijkt dat alle samples een zeer hoge glans hebben en hier niet veel variatie te observeren is bij verandering van coating. .



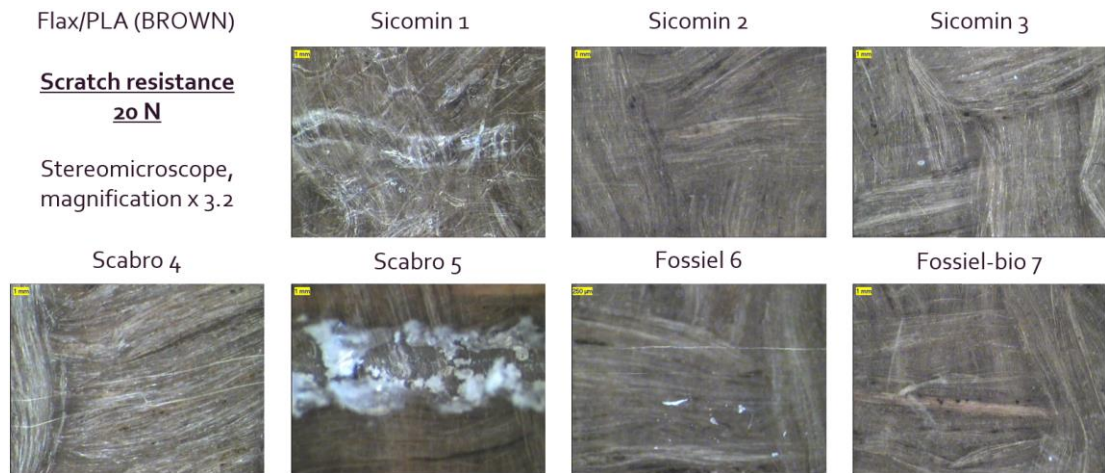
Figuur 11: Resultaten van de hardheid en glansmetingen voor de gecoate vlas-epoxy en vlas-PLA samples. Hardheid is uitgedrukt in Shore D, glans in arbitraire eenheden t.o.v. interne referentie. Standaardvariatie op hardheidswaarde  $\pm 2$ , spreiding op glanswaarden  $\pm 3$ .

#### 4.1.2 Krasbestendigheid

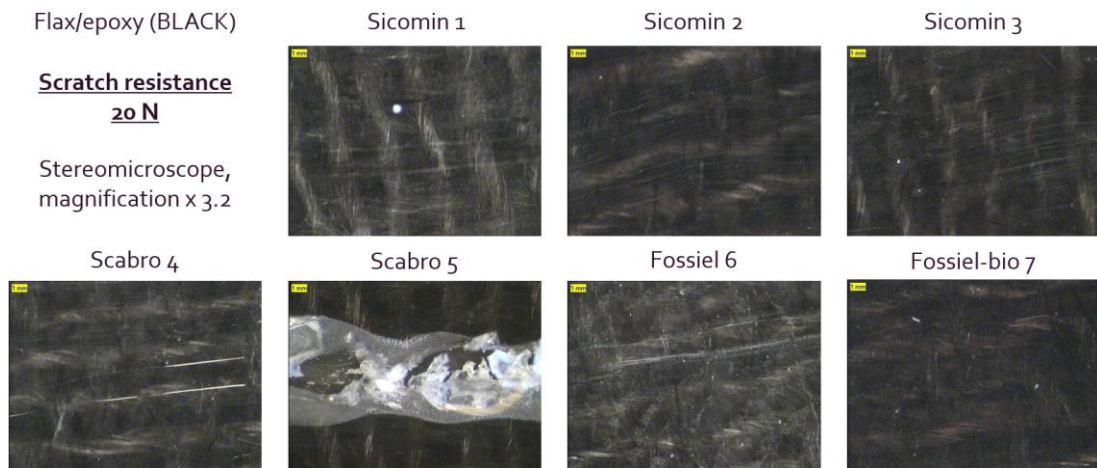
De krasbestendigheid van de gecoate samples is getest door krassen te maken op het gecoate oppervlak met een manuele krastester (sclerometer type 3092, Elcometer) volgens ISO 4586-2. Op deze krastester is een harde wolfram-carbide (WC) tip met diameter 0.75 mm gemonteerd die met een ingestelde kracht van 20 N overheen het oppervlak krast. De ingestelde kracht is experimenteel gekozen op basis van voorgaande experimentele ervaringen, waarbij lagere krachten (10 N) niet tot schade van de coatings leiden.

Figuur 12 en 13 tonen de resultaten van de krastest op de gecoate vlas-PLA en vlas-epoxy plaatjes. In beide figuren is een gelijkaardige trend te zien die de intrinsieke mechanische eigenschappen van de coatings weergeven. Sample 5 vertoont duidelijk de laagste krasbestendigheid in overeenstemming met de lage hardheid die gemeten werd op het sample. Dit reflecteert opnieuw de ongunstige combinatie van diluent met fossiele crosslinker, die een lage graag van crosslinking induceren. Op sample 1, 4 en 6 zijn kleine krasbeschadigingen te zien in overeenstemming met de middelmatige hardheden uit voorgaande paragraaf, hierbij vertoont sample 4 hoofdzakelijk plastische vervorming van het materiaal. Deze samples scoren hierdoor gemiddeld. Sample 2, 3 en 7 vertonen geen sporen van beschadiging en vertonen dus het beste resultaat. Het gebruik van een biogebaseerde phenalkamine verharder levert verbeterde mechanische resistentie van de

coating, waarbij het gebruik van een trifunctioneel diluent geen significante reductie in mechanische weerstand veroorzaakt.



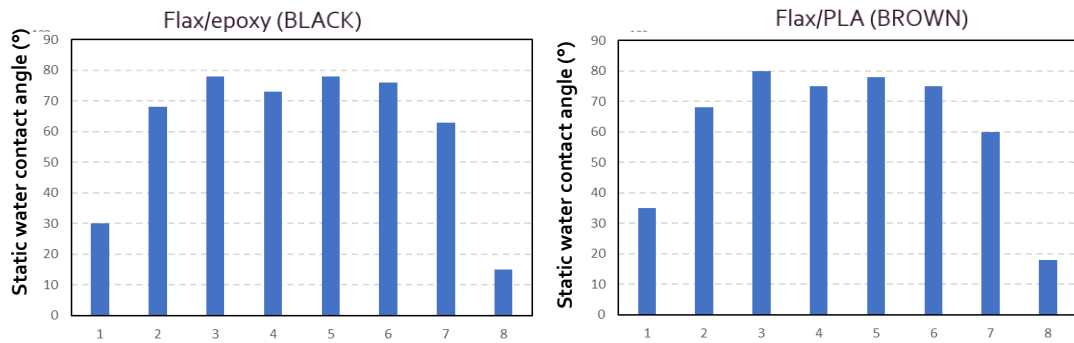
Figuur 12: Resultaten van de krasbestendigheidsmetingen voor de gecoate vlas-PLA samples



Figuur 13: Resultaten van de krasbestendigheidsmetingen voor de gecoate vlas-epoxy samples

#### 4.1.3 Waterbestendigheid

Waterbestendigheid van gecoate substraten is in eerste instantie gekarakteriseerd door het meten van contacthoeken in een statische waterdruppel test (Figuur 14). Het toenemen van de contacthoek geeft aan dat de waterdruppel beter op het oppervlak blijft staan zonder zich te spreiden over het oppervlak of in te dringen. De originele biocomposieten zijn niet waterbestendig en geven aanleiding tot het snel indringen van de waterdruppel in het oppervlak, zoals aangegeven door de lage contacthoek. Na aanbrengen van de coatings worden hogere contacthoeken in de buurt van 68 tot 73° bekomen, waarbij de waterdruppel stabiel op het oppervlak blijft staan. Er is een tendens dat biogebaseerde phenalkamine harders en biogebaseerde diluenten aanleiding geven tot een iets hogere contacthoek.



Figuur 14: Statische watercontacthoeken gemeten op gecoate vlas-epoxy en vlas-PLA samples. Standaardvariatie op statische watercontacthoeken  $\pm 3$

De waterbestendigheid van een oppervlak kan bijkomend getest worden met de Karsten-Sheen waterkolom test. Tijdens deze test wordt een waterkolom met 3 ml water op het oppervlak gezet en het verschil in watervolume na 5 minuten opgemeten (zakken van de waterkolom door eventuele absorptie en penetratie van het water in het gecoate biocomposiet). Deze test is uitgevoerd op alle samples zowel voor als na de krasttest om zo inzicht te krijgen in het effect van krasbeschadiging op de waterbestendigheid van gecoate biocomposieten.

Figuur 15 toont de resultaten. Hierop is te zien dat een ongecoat plaatje steeds een kleine hoeveelheid water absorbeert. Wanneer een coating op deze samples wordt aangebracht is te zien dat de absorptie volledig verdwijnt. Dit is te zien bij alle coatings en in overeenstemming met het stabiel blijven van de watercontacthoek in voorgaande test. Na de krasttest, beschreven in 4.1.2, is bij sample 5 en 7 toch een kleine waterabsorptie te zien. Het is duidelijk dat sterke mechanische beschadiging van de coating bij sample 5 de waterbarrière doorbreekt, terwijl het sample 7 met een mix van fossiele binder en biogebaseerde harder toch een intrinsiek minder stabiele coating vertoont in parallel met de contacthoek rond 63°. De combinatie van biogebaseerde binder met biogebaseerde verharder lijkt meer stabiele resultaten te leveren, mogelijks door de iets betere applicatievoorwaarden en hogere viscositeit van het mengsel tussen fossiel hars met biogebaseerde verharder.

Sample	Original (non-scratched)		Scratched		Remarks
	Brown = flax/PLA	Black = flax/epoxy	Brown = flax/PLA	Black = flax/epoxy	
uncoated	0.1 ml/5min	0.1 ml/5min	0.1 ml/5min	0.1 ml/5min	
Sicomín 1	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	
Sicomín 2	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	
Sicomín 3	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	
Scabro 4	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	
Scabro 5	o ml/5min	o ml/5min	0.1 ml/5min	0.1 ml/5min	
Fossiel 6	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	o ml/5min	
Fossiel-bio 7	o ml/5min	o ml/5min	0.1 ml/5min	0.1 ml/5min	Surface effects

Figuur 15: Resultaten van de Karsten-Sheen waterkolom test voor de gecoate en originele samples, voor en na de krasttest

#### 4.1.4 Verouderingstesten onder blootstelling aan UV

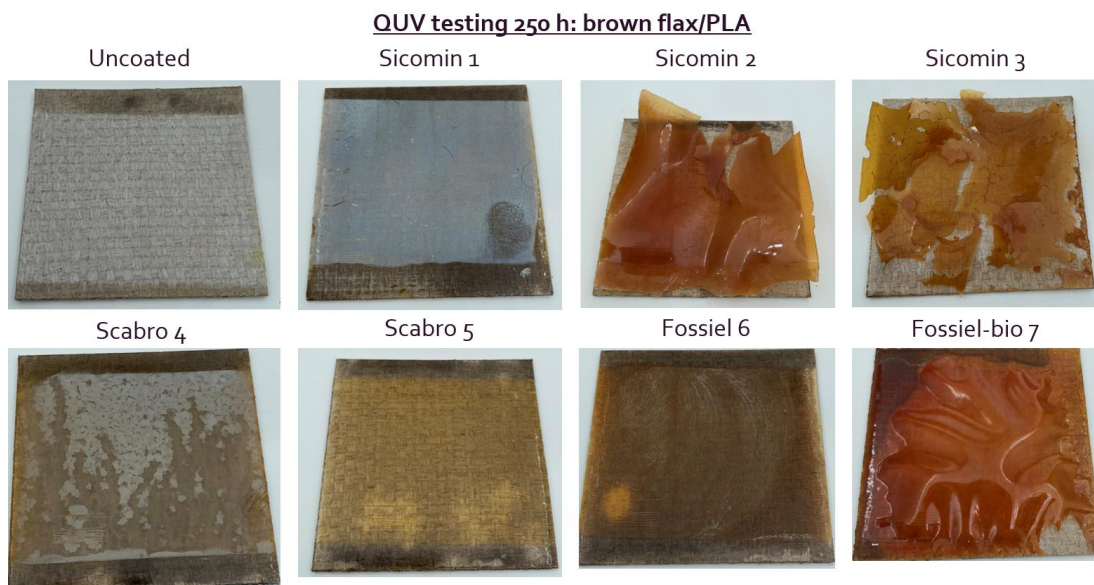
Versnelde verouderingstesten onder cyclische blootstelling aan UV zijn uitgevoerd op gecoate samples in een QUV-test volgens ASTM G154. Gedurende een cyclische test worden vochtigheid, UV en temperatuur gevarieerd binnen grenzen die representatief zijn voor mogelijke buitentoepassingen van de materialen. Zo werd voor deze test een testduur

van 250 uur ingesteld met een gestandaardiseerd cyclus van belichting (UV A340 lampen) en condensatie onder representatieve temperaturen::

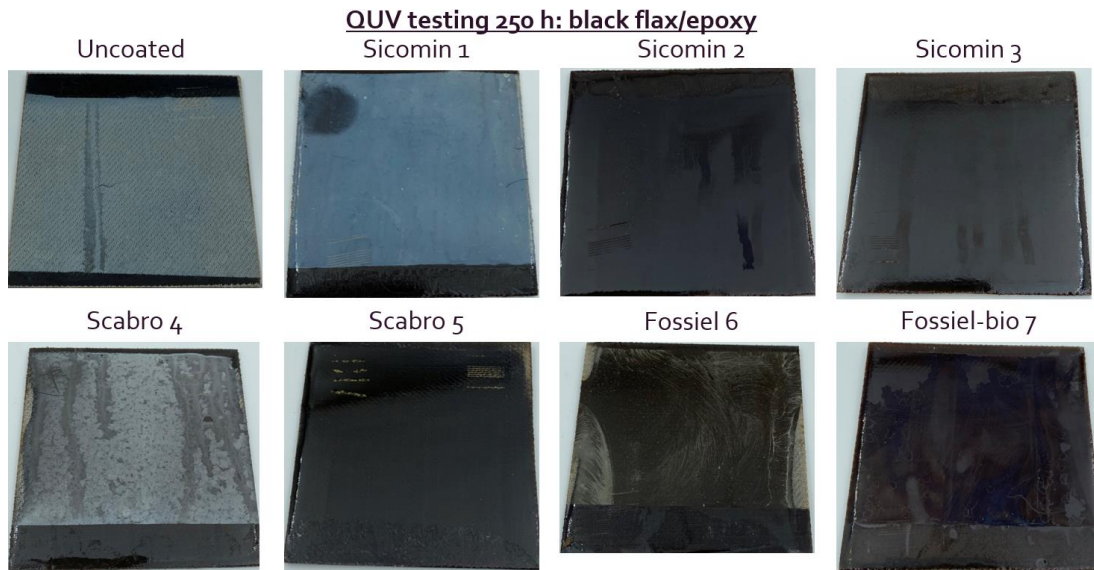
- 8 uur UV (0,89 W/m<sup>2</sup>nm) – 60 °C
- 4 uur Condensatie – 50 °C

Figuur 16 en 17 tonen de samples na de QUV-cyclus. Linksboven Figuur 16 en 17 is te zien dat de samples zonder coating zowel bij PLA als epoxy volledig verbleekt zijn. Verder is voor de vlas-PLA plaatjes coating 2, 3 en 7 af de plaatjes gekomen. Een verklaring hiervoor is dat de QUV-cyclus een maximale temperatuur van 60°C gebruikt, terwijl de glastransitietemperatuur van PLA ook rond 60°C ligt. Bij vlas-epoxy plaatjes is namelijk geen onthechting te zien. Sample 1 vertoont verder zowel bij PLA als epoxy een witte schijn die te verwijderen is wanneer je hierover wrijft. Sample 4 vertoont zowel bij PLA als epoxy een degradatie van de coating. Over het algemeen slagen de coatings erin om het plaatmateriaal te beschermen tijdens de QUV-cyclus. Sample 5 en 6 tonen de beste resultaten. Sample 2, 3 en 7 scoren ook goed bij de epoxy plaatjes. En buiten de witte schijn, biedt sample 1 ook een goed bescherming.

Bovenstaande testen zijn enkel uitgevoerd met oog op onderlinge vergelijking van de intrinsieke weerstand voor verschillende epoxy-type coatings en hebben niet tot doel de UV bestendigheid van de coatings verder te optimaliseren. Typische degradatiemechanismen van epoxy onder UV belichting zijn gekend (chemische degradatie en/of verdere vernetting van polymeerketens, oxidatie, gel formatie, gevoeligheid van de aromatische structuur van het bisphenol-A, ...), en weerstand tegen UV veroudering wordt meestal verbeterd door toevoeging van specifieke additieven. Er is wel een aanwijzing dat de verhoogde UV weerstand voor sample 2, 3 en 5 kan te wijten zijn aan de aanwezigheid van biogebaseerde verharder en/of biogebaseerd diluent die mogelijks een verhoogde graad van vernetting geven. Anderzijds, zijn andere verouderingsmechanismen niet verder in detail uitgewerkt binnen deze studie, maar zijn er voorgaande aanwijzingen dat eventuele migratie van niet-vernette residuele groepen naar het oppervlak de UV resistentie van biogebaseerde coatings kan verhogen t.o.v. fossiel-gebaseerde coatings.



*Figuur 16: Resultaten van originele en gecoate vlas-PLA plaatjes na QUV-testcyclus van 250 uur*



Figuur 17: Resultaten van originele en gecoate vlas-epoxy plaatjes na QUV-testcyclus van 250 uur

#### 4.1.5 Conclusie coatingtesten testreeks 1

6 bio-epoxy coatings en 1 referentie coating zijn getest in testreeks 1. Uit de glansmetingen blijkt dat alle samples een hoge glans hebben en hier niet veel variatie in zit bij verandering van coating. De hardheidsresultaten tonen dat de toevoeging van diluent de hardheid doet afnemen tegenover dezelfde hars-verharder combinatie zonder diluent. Van de biocoatings toont sample 2 de hoogste hardheid. Deze hardheid is ook hoger dan het referentie sample met een fossiele coating zonder diluent (sample 6).

Na belasting met de krastester vertoont sample 5 ook de laagste krasbestendigheid. Op sample 1, 4 en 6 zijn kleine krasbeschadigingen te zien, hiernaast vertoont sample 4 hoofdzakelijk plastische vervorming van het materiaal. Deze samples scoren hierdoor gemiddeld. Biocoating samples 2, 3 en sample 7 met een fossiele coating vertonen geen sporen van beschadiging en hebben hierdoor de hoogste krasbestendigheid.

De Karsten-Sheen waterkolom test op een ongecoat sample, toont dat bij blootstelling aan water een kleine waterabsorptie optreedt en bevestigt hierbij de watergevoeligheid in overeenstemming met stabilisatie van de watercontacthoeken. Wanneer een coating op deze samples wordt aangebracht is te zien dat de absorptie volledig verdwijnt. Dit is te zien bij alle coatings. Na de krastest, beschreven in 4.1.2, is bij sample 5 en 7 toch een kleine waterabsorptie te zien.

Over het algemeen slagen de coatings erin om het plaatmateriaal te beschermen tegen temperatuur-, UV-, en vochtigheidsvariaties van een QUV-cyclus. Enkele coatings zijn losgekomen van vlas-PLA plaatjes omdat de testtemperatuur boven de glastransitietemperatuur van PLA lag. Omdat dit een vertekend beeld geeft over de QUV-resistentie van deze coatings, zal testreeks 2 hier verder op ingaan.

## 4.2 Testreeks 2

In een tweede testreeks zijn demonstratieproeven uitgevoerd die focussen op de bescherming van vlas-PLA composieten met biocoatings, waarbij de invloed van de

vezelstructuur van het substraat is nagegaan, i.e. een weefsel versus een non-woven vezelstructuur. In totaal zijn 4 biocoatings getest in deze testreeks. 2 klassieke biocoatings: wax en lijnzaadolie, en 2 bio-epoxy coatings die geselecteerd zijn uit testreeks 1 (i.e., sample 1 en 2, zie Figuur 18) volgens beste performantie naar mechanische hardheid.

#### Sicomín

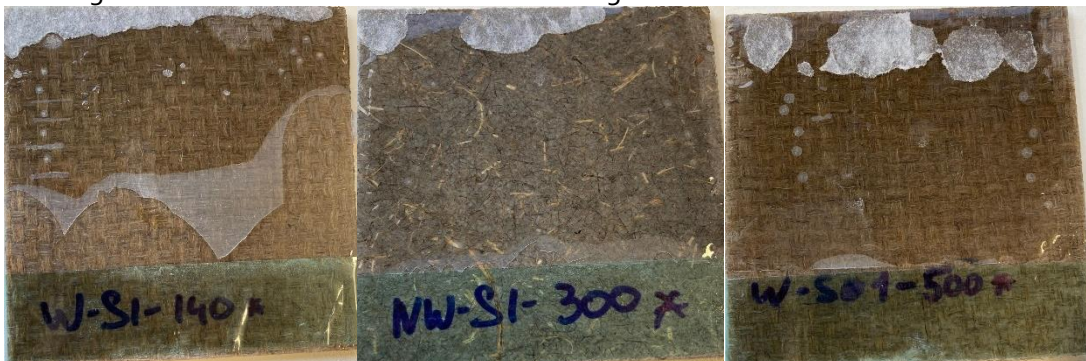
	Surf Clear ECO (resin)	ECO Fast (hardener)	bio triglycidyl ether (diluent)	phenalkamine
sample 1	22,5	9,225		
sample 2	15			7,875

Figuur 18: Formulatie van bio-epoxy coatings getest tijdens testreeks 2

#### 4.2.1 Oppervlaktebehandeling en diktevariatie in bio-epoxy coatings

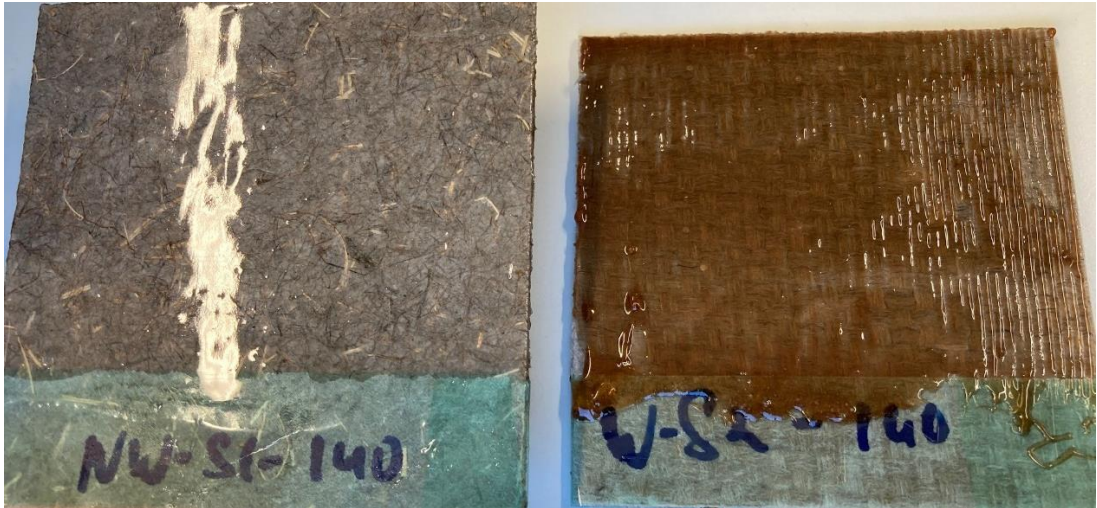
Deze testreeks heeft testen gedaan naar de ideale aanbrenging van de bio-epoxy coatings. Zo zijn verschillende aanbrengingsdiktes getest (140  $\mu\text{m}$ , 300  $\mu\text{m}$ , 500  $\mu\text{m}$ ) en zijn verschillende oppervlaktevoorbehandelingsmethodes getest (geen, geschuurd P240 en corona behandeling).

De aanbrenging van de epoxy coatings op het oppervlak zonder voorbehandeling geeft geen goede hechting. Zo komt de coating aan de coatingrand reeds los zonder belasting en zijn binnenin het vlak ook enkele lokale onthechtingen te zien. Dit wordt getoond door Figuur 19. Hierdoor is voor de andere testen van deze testreeks het sampleoppervlak steeds vooraf geschuurd of behandeld met corona straling.

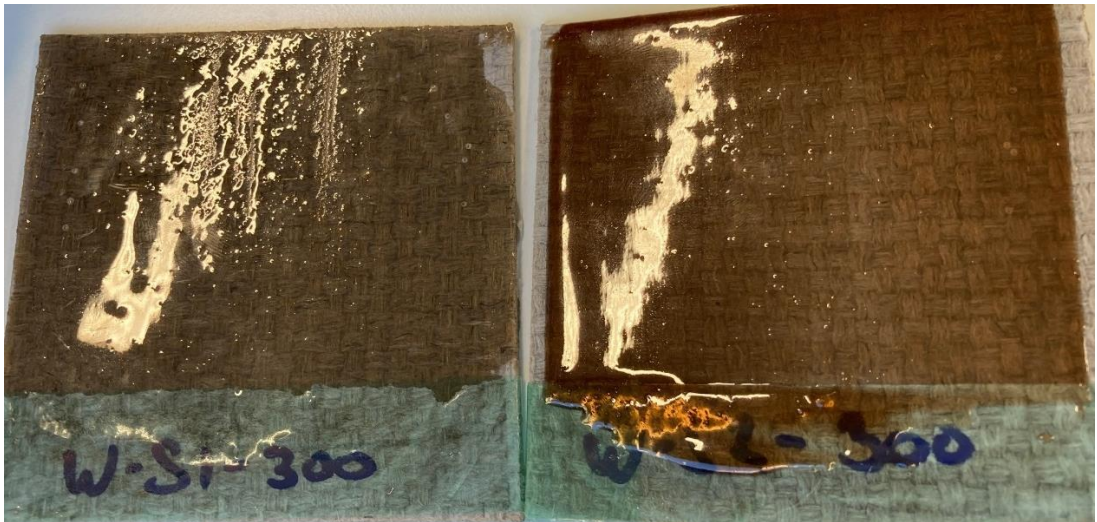


Figuur 19: Voorbeeld van coatingonthechting zonder voorbehandeling voor bio-epoxy sample 1 bij een coatingdikte van 140  $\mu\text{m}$ , 300  $\mu\text{m}$  en 500  $\mu\text{m}$

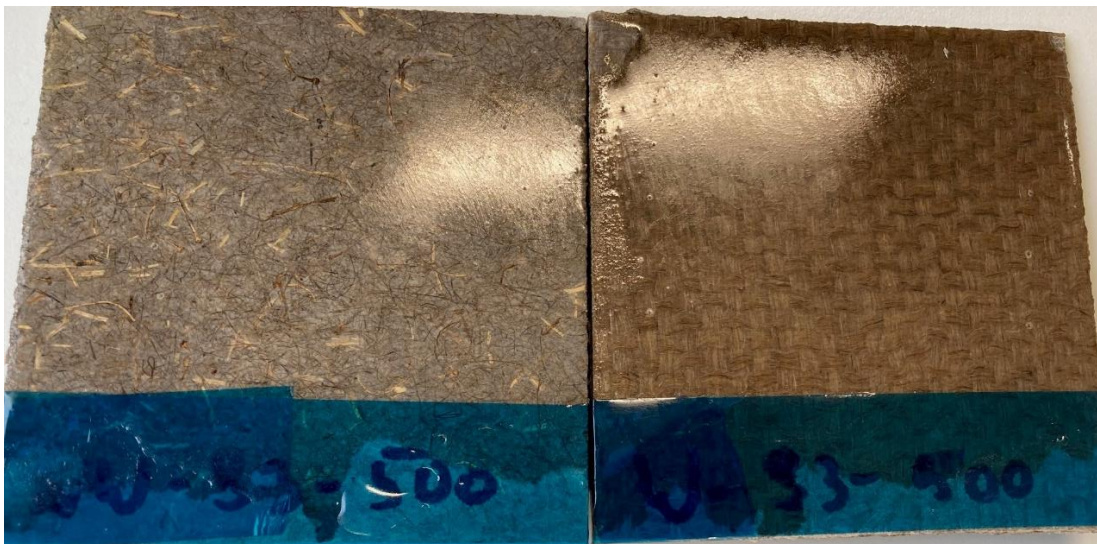
Verder is bij visuele inspectie na aanbrenging te zien dat coatings met een dikte van 140  $\mu\text{m}$  en 300  $\mu\text{m}$  geen goede uitvloeiing bekomen met als resultaat een coatingoppervlak dat niet vlak is. Figuur 20, 21 en 22 tonen de trend dat de coatings vlakker en stabiel worden naarmate de coatingdikte toeneemt. Na visuele inspectie van deze testen is te zien dat enkel een coatingdikte van 500  $\mu\text{m}$  voor een goede uitvloeiing en vlak resultaat zorgt. Een golvend coatingoppervlak geeft over het algemeen een grote spreiding bij karakterisatie metingen. De lokale dewetting-effecten die optreden over het oppervlak worden opgeheven bij hogere coatingdiktes. Hierdoor worden in het vervolg van deze sectie enkel coatingresultaten vergeleken van bio-epoxy coatings met een dikte van 500  $\mu\text{m}$ .



Figuur 20: Bio-epoxy coatings sample 1 (links) en 2 (rechts) met 140 µm coatingdikte



Figuur 21: Bio-epoxy coatings sample 1 (links) en 2 (rechts) met 300 µm coatingdikte



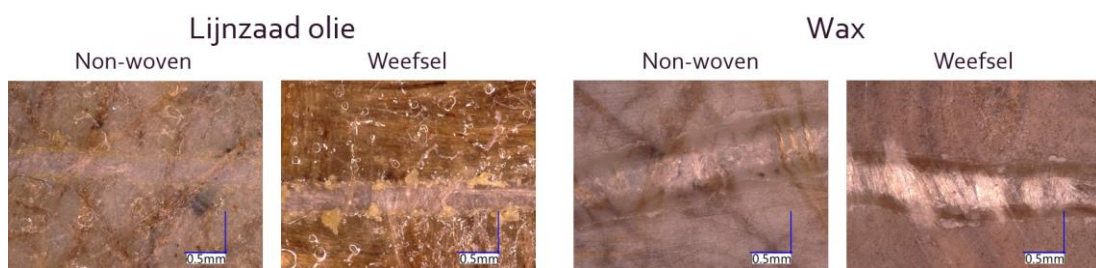
Figuur 22: Bio-epoxy coating sample 3 met 500 µm coatingdikte



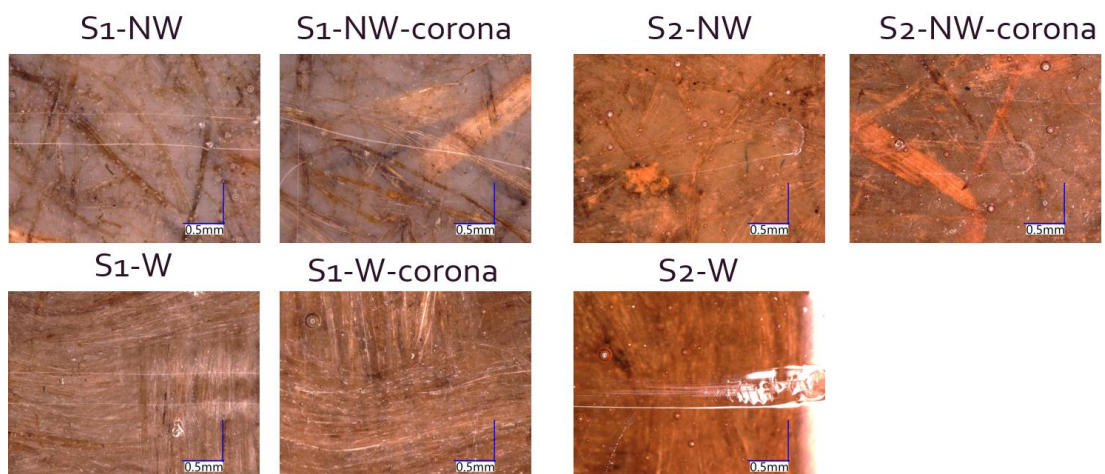
#### 4.2.2 Krastesten

Als eerste karakterisatietest is een krastest uitgevoerd op de biocoatings, methode identiek aan paragraaf 4.1.2. Deze testen zijn uitgevoerd met een krastester die over het coatingoppervlak beweegt met een puntlast van 20N. De testresultaten zijn weergegeven op Figuur 23, voor de lijnzaadolie en wax coating, en Figuur 24, voor de bio-epoxy coatings. De resultaten voor lijnzaadolie en wax tonen dat de krastester volledig door de coatingoppervlaktes gaat en de coatings dus geen extra bijdrage leveren in krasbestendigheid van de coating. De mechanische sterkte van wax coatings is beperkt door het uitblijven van crosslinking reacties. De crosslinking van lijnzaadcoatings gebeurt door oxidatieve vernetting van de niet-gesatureerde (C=C) bindingen in de structuur van de olie, maar is over het algemeen een traag verlopend proces. Daarom is gekozen voor toepassing van vernetbare epoxy-coatings waarbij de vernetting onder invloed van temperatuur verloopt. Op de bio-epoxy coatings is steeds een kleine kras te zien met hierin weinig variatie bij de verschillende coatingtypes. Hieruit blijkt dat zowel sample 1, als sample 2 met schuur of met corona behandeling een verbetering geven in de krasbestendigheid door minder kans op lokale onthechting van de coating.

De mechanische beschadiging van de coatings lijkt identiek te zijn voor zowel weefselstructuren (W) als non-woven structuren (NW) en enkel in de coating te zijn gesitueerd.



Figuur 23: Resultaat krastesten klassieke biocoatings lijnzaadolie en wax



Figuur 24: Resultaat krastesten bio-epoxy coatings; NW = non-woven, W = weefsel, S1 = bio-epoxy sample 1, S2 = bio-epoxy sample 2, corona = voorbehandeld met corona straling in plaats van opgeschuurd

#### 4.2.3 UV- en waterbestendigheid

Het resultaat van de QUV-testen met een temperatuur-, UV en condensatiecyclus in sectie 4.1.3 leverde bij enkele vlas-PLA plaatjes onthechting van de coating op als gevolg van

opwarming boven de glastransitietemperatuur van PLA. Tijdens de tweede testreeks zijn deze testen opnieuw uitgevoerd met een aangepaste cyclusparameters. De volgende aangepaste (mildere) cyclus werd 168 uur uitgevoerd:

- 8 uur UV (0,76 W/m<sup>2</sup>nm) – 40 °C
- 4 uur Condensatie – 35 °C

Deze test is uitgevoerd op volgende samples:

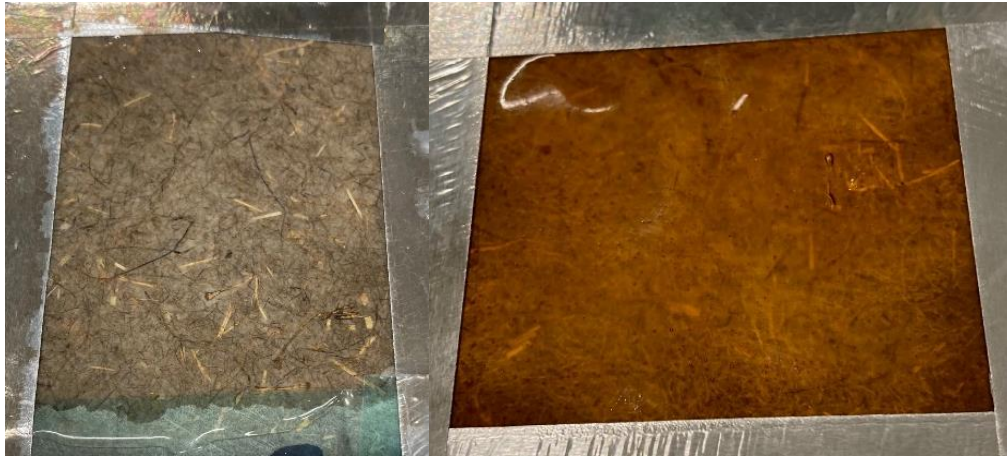
- Lijnzaadolie (non-woven en weefsel)
- Wax (non-woven en weefsel)
- Bio-epoxy Sample 1 – 500 µm (non-woven en weefsel)
- Bio-epoxy Sample 2 – 500 µm (non-woven en weefsel)
- Bio-epoxy Sample 1 – 500 µm (weefsel met corona behandeling)
- Bio-epoxy Sample 2 – 500 µm (non-woven met corona behandeling)

Als startpunt in de vergelijking van biocoatings is het nuttig om te starten met een visuele vergelijking. Zo tonen Figuur 25 en 26 de algemene visuele verschillen van bescherming met lijnzaadolie, wax, bio-epoxy sample 1 en sample 2.

Een visuele inspectie toont dat het sample met lijnzaadolie volledig verbleekt en het hiernaast het sample met bio-epoxy sample 2 oranje verkleurt en lokale onthechting vertoont. Hieruit kan opgemaakt worden dat deze biocoatings geen goede bescherming geven tegen een UV- en condensatiecyclus. De redenen voor lage UV-bescherming van epoxy coatings is voorheen toegelicht in paragraaf 4.1.4. Een wax coating of bio-epoxy sample 1 coating vertonen echter geen visuele veranderingen na de QUV-cyclus en tonen hiermee een goede bescherming tegen een UV- en condensatiecyclus.



*Figuur 25: Uitzicht van de plaatjes met klassieke biocoating na een QUV-cyclus; links = sample met lijnzaadolie coating, rechts = sample met wax coating*



*Figuur 26: Uitzicht van de plaatjes met bio-epoxy coating na een QUV-cyclus; links = sample 1, rechts = sample 2*

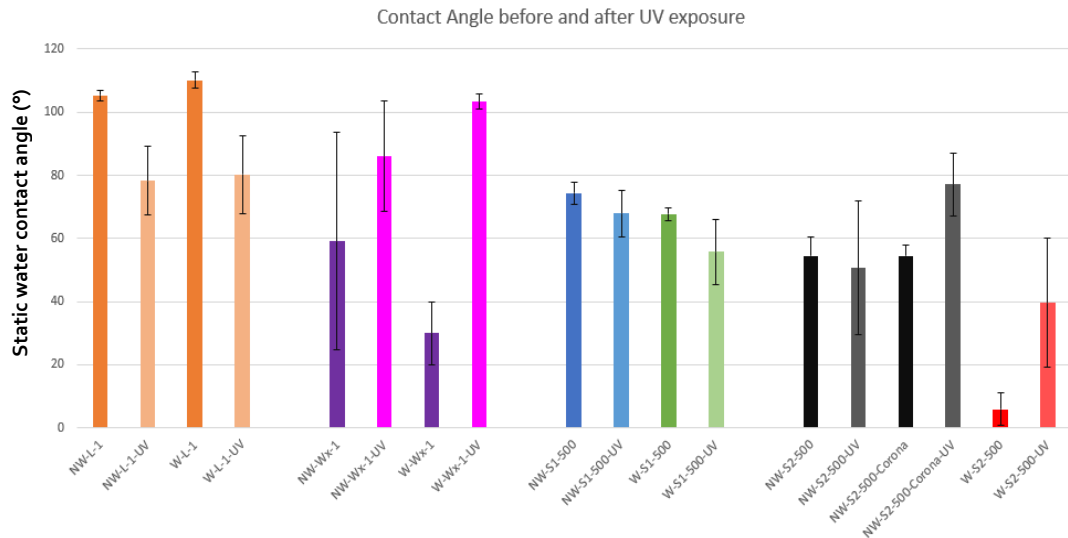
Om het effect van degradatie van biocoatings onder UV belasting verder te karakteriseren zijn contacthoek- en glansmetingen uitgevoerd voor en na de QUV-cyclus, volgens methodes beschreven in paragraaf 4.1.3 en paragraaf 4.1.1.

Figuur 27 toont de resultaten van contacthoekmetingen voor en na UV blootstelling. Veranderingen in contacthoeken na UV belasting kunnen het gecombineerde gevolg zijn van zowel chemische veranderingen aan het oppervlak (vb. chemische degradatie, migratie van moleculen, ...) en/of veranderingen in oppervlaktestructuur (vb., ruwheid).

De resultaten van de lijnzaadolie coating (oranje resultaten) en van bio-epoxy coating sample 2, zonder corona behandeling, (zwart) bevestigen de eerdere visuele waarnemingen. De aantasting van de samples door de QUV-belasting is in beide gevallen te zien door een algemene lagere contacthoek en een grotere spreiding in de resultaten. Resultaten voor degradatie van de bio-epoxy coatings zijn niet eenduidig op basis van deze preliminaire screening, en geven mogelijk ook aanleiding tot een verhoging van contacthoek in geval van het bio-epoxy sample 2 met corona-voorbehandeling. Deze verhoging kan te wijten zijn aan de betere hechting en bescherming van de coating t.o.v. het substraat, anderzijds kunnen ook chemische processen een rol spelen waarbij de chemische groepen die geïnduceerd werden onder corona voorbehandeling (e.g. vrije uiteinden van de polymeerketens of vrije ionen aan het oppervlak) reactief blijven onder UV belichting en chemische vernetting gaan introduceren. Deze mechanismen werden echter niet verder onderzocht in dit onderzoek omwille van de complexe samenhang van verschillende chemische fenomenen.

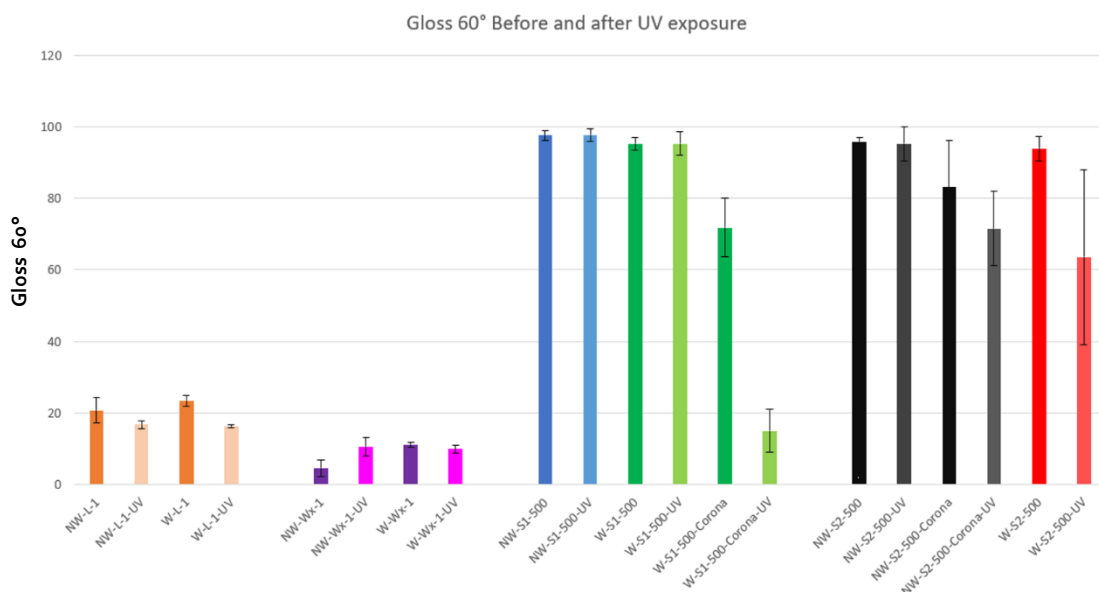
De resultaten van de wax-coating (paars) tonen dat de contacthoek, en dus de waterafstoting, groter wordt na de QUV-belasting. Eenduidige verklaringen zijn hiervoor niet verder onderzocht, maar zouden kunnen te wijten zijn aan afbraak van de polymeerketens en migratie van laagmoleculaire fracties naar het oppervlak, waar ze een verhoogde hydrophobiciteit bieden.

De resultaten van de bio-epoxy sample 2 coating (blauw en groen) tonen een lichte daling in contacthoek en/of vergroting van de spreiding. Dit toont dat, ondanks weinig visuele verschillen, het sample wel een degradatie ondergaat. Deze degradatie is weliswaar beperkt tegenover de andere samples.



Figuur 27: Contacthoekmetingen, in °, op de biocoatings voor en na QUV-cyclus; NW = non-woven, W = weefsel, UV = na UV-belasting, L = lijnzaadolie coating, Wx = wax coating, S1 = bio-epoxy coating sample 1, S2 = bio-epoxy coating sample 2, 500 = coatingdikte van 500 µm, Corona = corona voorbehandeling ipv opschuren

De resultaten van glansmetingen voor en na UV blootstelling, op Figuur 28, tonen duidelijke verschillen tussen lijnzaadolie, wax en bio-epoxy coatings. Zo zijn lijnzaadolie en wax coatings zeer mat met een lage glans en hebben bio-epoxy coatings een hoge glans. Verder toont Figuur 28 een gelijkaardige trend in degradatie van de samples met een algemene verlaging van de glans en vergroting van de spreiding tot gevolg. De stabiliteit van bio-epoxy coatings t.o.v. glans na UV blootstelling valt binnen de statistische spreiding van de resultaten. Naast de vergelijking van coatings, tonen Figuur 27 en 28 ook het verschil tussen een schuurbehandeling en corona behandeling, waarbij de samples met een corona behandeling een grotere degradatie en grotere spreiding hebben in de resultaten na QUV-belasting. Mogelijke mechanismen van degradatie onder UV blootstelling van de coatings werden hierboven beschreven.



Figuur 28: Glansmetingen op de biocoatings voor en na QUV-cyclus; NW = non-woven, W = weefsel, UV = na UV-belasting, L = lijnzaadolie coating, Wx = wax coating, S1 = bio-epoxy coating sample 1, S2 = bio-epoxy coating sample 2, 500 = coatingdikte van 500 µm, Corona = corona voorbehandeling ipv opschuren, glans in arbitraire eenheden t.o.v. interne referentie

#### 4.2.4 Conclusie coatingtesten testreeks 2

Tijdens testreeks 2 zijn 2 bio-epoxy coatings en 2 klassieke biocoatings met elkaar vergeleken op basis van een krasstest en werd de impact van een QUV-cyclus in kaart gebracht met een visuele inspectie, contacthoekmeting en glansmeting.

Aanbrenging van de bio-epoxy coatings met verschillende coatingdiktes (140  $\mu\text{m}$ , 300  $\mu\text{m}$  en 500  $\mu\text{m}$ ) toonde moeilijkheden bij uitvloeiing en hierdoor niet vlakke resultaten bij een dikte van 140  $\mu\text{m}$  en 300  $\mu\text{m}$ . De uitvloeit bij een coatingdikte van 500  $\mu\text{m}$  geeft wel goede en stabiele resultaten. Schuren met P240 geeft het beste resultaat als oppervlaktebehandeling voor de coatings. Zonder oppervlaktebehandeling wordt een slechte hechting bekomen en een coronabehandeling zorgt voor een snellere degradatie na QUV-belasting.

De klassieke biocoatings lijnzaadolie en wax dragen niet bij tot de krasbestendigheid. De lijnzaadolie draagt ook niet bij tot een verhoging van de bestendigheid tegen een QUV-belasting. Een wax coating beschermt de vlas-PLA samples wel tegen een QUV-belasting. Vanwege interne reactie met de UV-straling toont de contacthoek zelfs een vergroting na QUV-belasting.

De twee bio-epoxy coatings zorgen beide voor een goede krasbestendigheid, hebben een hoge glans en vertonen een hoge initiële contacthoek. Sample 2 vertoont echter degradatie na een QUV-belasting. Sample 1 vertoont na QUV-belasting geen visuele verschillen en een lichte maar stabiele degradatie in glans en contacthoek.

## 5 Conclusie

Hoofdstuk 2 toont dat het mogelijk is om oppervlaktedefecten van thermoplastische biocomposieten te herstellen. Hiervoor wordt het materiaal opgewarmd tot boven de smeltemperatuur van de polymeermatrix en wordt druk uitgeoefend tijdens de opwarming en afkoeling van het materiaal. Deze druk mag niet te hoog zijn, anders zijn duidelijke randeffecten te zien aan de rand van de herstellingszone. Voor een goede herstelling heeft de reparatiemaal best een zo goed mogelijke oppervlaktekwaliteit, het herstellende oppervlak neemt deze kwaliteit namelijk over.

In het project is het gelukt om voor een gekrast oppervlak een goede herstellingskwaliteit met glad oppervlak te bereiken via een hydraulische pers, pneumatische pers en met een warme cilinder onder extra druk. Wat de geschikte herstellingsmethode is, hangt af van de beoogde oppervlakteruwheid, geometrie en grootte van het herstellende oppervlak van de toepassing.

Het overzicht rond afwerkingstechnieken in Hoofdstuk 3 toont dat naast klassieke mechanische afwerkingsprocessen ook (abrasie) waterjet snijden en lasersnijden gebruikt worden met als voordeel minder slijtage en een kleinere kans op delaminatie.

Wat de ideale procesparameters voor de afwerkingsprocessen zijn, varieert sterk en moet proces per proces, materiaal per materiaal en product per product bekeken worden met mogelijkheid tot optimalisatie. Over het algemeen zorgen hoge snijkrachten voor een hogere kans op delaminatie en een hogere oppervlakteruwheid. De krachten dalen typisch als de horizontale bewegingsnelheid afneemt, al zorgt dit rechtstreeks voor een productiviteitsverlies. Een goede afweging hierin is noodzakelijk.

De resultaten van de twee testreeksen met biocoatings in Hoofdstuk 4 toont het potentieel van bio-epoxy coatings om op biocomposieten te gebruiken. Glansmetingen tonen hierbij niet veel verandering na toevoeging van de coating. De Karsten-Sheen waterkolom test toont wel een verbetering in de waterbestendigheid door de toevoeging van de biocoatings. Hiernaast tonen hardheidsresultaten dat bio-epoxy coatings een gelijkaardige of hogere hardheid en krasbestendigheid kunnen opleveren als synthetisch gebaseerde coatings. Verschillende biocoatings tonen, bij toevoeging aan vlas-epoxy plaatmateriaal, bescherming tegen temperatuur-, UV-, en vochtigheidsvariaties van een QUV-cyclus. Voor vlas-PLA materiaal komt uit de testen één biocoating die geschikt is voor bescherming bij een QUV-cyclus.

Aanbrenging van de bio-epoxy coatings met verschillende coatingdiktes (140 µm, 300 µm en 500 µm) toonde moeilijkheden bij uitvloeiing en hierdoor niet vlakke resultaten bij een dikte van 140 µm en 300 µm. De uitvloeier bij een coatingdikte van 500 µm geeft wel goede en stabiele resultaten. Schuren met P240 geeft het beste resultaat als oppervlaktebehandeling voor de coatings. Zonder oppervlaktebehandeling wordt een slechte hechting bekomen en een coronabehandeling zorgt voor een snellere degradatie na QUV-belasting.

De klassieke biocoatings lijnzaadolie en wax dragen niet bij tot de krasbestendigheid. De lijnzaadolie draagt ook niet bij tot een verhoging van de bestendigheid tegen een QUV-belasting. Een wax coating beschermt de vlas-PLA samples wel tegen een QUV-belasting. Vanwege interne reactie met de UV-straling toont de contacthoek zelfs een vergroting na QUV-belasting.

## 6 Referenties

- [1] S. Sapuan, M. Jawaid, N. Yusof and M. Enamul Hoque, "Manufacturing of Natural Fiber Reinforced Polymer Composites," Springer, Cham, Switzerland; Heidelberg, Germany; New York, NY, USA; Dordrecht, The Netherland; London, UK, 2015.
- [2] F. Masoud, S. Sapuan, M. K. A. M. Ariffin, Y. Nukman and E. Bayraktar, "Cutting Processes of Natural Fiber-Reinforced Polymer Composites," MDPI, Serdang, 2020.
- [3] M. Rajesh, K. Rajkumar, K. M. Nambiraj and K. Ramraji, "Evaluation of Surface Integrity of Multi-stacked Glass Interplyed with Flax Laminate by Abrasive Waterjet Machining," Springer, Singapore, 2020.