

DIFFUSION NON-FICKIENNE D'UN SOLVANT DANS UN POLYMERE CHARGE DES FIBRES

S. BENTIS, A. EL AFIF

Laboratoire de Mécanique et Energétique. Faculté des Sciences. Université Chouaib Doukkali. El Jadida, Maroc

Auteur correspondant: alielafif2005@yahoo.fr

Résumé

Dans ce travail, nous étudions la diffusion isotherme dans les polymères renforcés de fibres (PRFs). Dans ces matériaux, considérés comme des milieux complexes, le comportement du transport de masse est non-Fickien à cause du couplage qui survient entre la diffusion et le changement spatio-temporel de l'orientation des fibres. En plus de la fraction massique c des particules diffusantes, nous avons choisi de caractériser l'orientation des fibres par un tenseur symétrique d'ordre deux. Comme résultats obtenus, nous avons calculé entre autres, dans le cas de la sorption unidirectionnelle, les profils de la distribution de la concentration ainsi que celle de l'orientation. L'évolution du gain en poids en fonction du temps nous a permis de caractériser le comportement de la diffusion.

Mots clés: Fibre - Polymère - Diffusion - Orientation.

1. Introduction

Les Polymères renforcés de fibres sont aujourd'hui utilisés dans de nombreuses applications telles que celles reliées aux industries de l'aérospatiale, de l'automobile, du textile et de la construction en tant que renforts dans le béton, tabliers de ponts, structures modulaires, coffrage, renforcement et mise à niveau sismique [1, 2]. Ce sont des matériaux composites constitués d'une matrice en polymère dans laquelle sont dispersées des fibres soit aléatoirement ou selon une configuration spatiale bien choisie. Les fibres sont, en général, en verre, en carbone, en aramide, en papier ou en bois. La matrice est habituellement un époxy, un vinylester, un polyester thermodurcissable plastique, ou des résines phénol-formaldéhyde.

L'objectif de ce travail est de discuter le cas où le changement de l'orientation des fibres de renforcement peut influencer sur le comportement du transport de masse et réciproquement, comment la diffusion peut influencer l'orientation des fibres et donc le comportement mécanique de ces matériaux. Notre modèle introduit un tenseur d'orientation d'ordre deux comme une variable

d'état additionnelle pour laquelle nous avons formulé une nouvelle équation d'évolution qui incorpore explicitement le couplage entre l'orientation et la diffusion. Il est clair que la diffusion dans les (PRFs) ne peut pas être décrite adéquatement par la théorie de Fick qui stipule que le flux de masse est linéairement proportionnel au gradient de la concentration. En effet, plusieurs études montrent [3,4] que le couplage entre la diffusion et la déformation de la structure interne a une grande influence sur le comportement de la diffusion. Par conséquent, les lois de Fick doivent être généralisées en vue de tenir compte des effets de ces couplages. Ici, la structure interne provient de la présence des fibres dont l'orientation peut interagir avec le processus moléculaire de la diffusion.

2. Modèle

Le système étudié est un mélange ternaire constitué d'un solvant (fluide simple) et d'un milieu polymérique renforcé de fibres (milieu complexe).

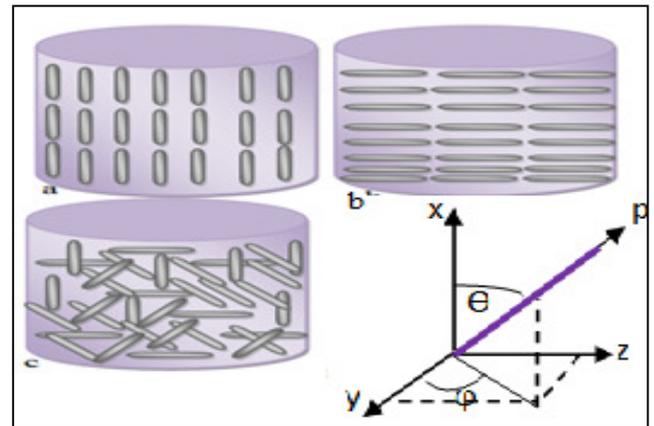


Figure 1: Représentation schématique d'un (PRF). Fibres orientées uni-directionnellement (a et b) et fibres distribuées aléatoirement (c)

Afin de décrire correctement le comportement de la diffusion du solvant dans un (PRF), nous choisissons les variables d'état suivantes :

- i) la fraction massique du solvant c
- ii) le tenseur d'orientation d'ordre deux :

$$a_2 = \int p p \psi(p) dp \quad (1)$$

défini comme étant le moment d'ordre deux de la fonction de distribution d'orientation des fibres dans la matrice, $\psi(p)$ du vecteur orientation p dirigé selon l'axe principal de la fibre. Dans cette contribution, nous limitons l'étude au cas de la diffusion unidirectionnelle, que nous choisissons arbitrairement suivant la direction x . Nous nous intéressons à la diffusion à travers un film de polymère Newtonien dans lequel sont dispersées des fibres. Par conséquent, étant donné la symétrie du problème considéré, le tenseur d'orientation d'ordre 2 s'écrit sous la forme :

$$a_2 = \begin{pmatrix} a_{11} & 0 & 0 \\ 0 & a_{22} & 0 \\ 0 & 0 & a_{22} \end{pmatrix} \quad (2)$$

En résumé, l'ensemble des variables d'état pour décrire le phénomène de la diffusion dans ce milieu complexe est :

$$(c, a_{11}, a_{22}) \quad (3)$$

Pour généraliser, l'expression du flux de masse, nous utilisons les considérations de la thermodynamique des processus irréversibles qui stipule que la force active pour la diffusion n'est plus le gradient de concentration mais plutôt le gradient du potentiel chimique. Dans cette perspective, nous écrivons le flux de diffusion suivant la direction x sous la forme:

$$J = -\rho D \left(\frac{\partial c}{\partial x} + A_1 \frac{\partial a_{11}}{\partial x} + A_2 \frac{\partial a_{22}}{\partial x} \right) \quad (4)$$

Le paramètre D représente la diffusivité, ρ est la densité globale du mélange et A_1 et A_2 sont des constantes de couplage. La conservation de la masse des molécules de solvant dans les polymères renforcés de fibres en l'absence de réactions chimiques et de l'écoulement est donnée par l'équation de continuité suivante:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \left(\frac{\partial c}{\partial x} + A_1 \frac{\partial a_{11}}{\partial x} + A_2 \frac{\partial a_{22}}{\partial x} \right) \right) \quad (5)$$

Lors de la diffusion, les fibres se réorientent sous l'effet des gradients des flux de masse. Par conséquent, Afin de fermer le système des équations d'évolution, le modèle est complété par deux autres équations qui donnent l'évolution dans le temps des deux composantes du tenseur d'orientation a_2 . La première est l'équation d'évolution de a_{11} :

$$\begin{aligned} \frac{\partial a_{11}}{\partial t} = & - \left(\frac{D}{(1-c)} \right) \left(\frac{\partial c}{\partial x} + A_1 \frac{\partial a_{11}}{\partial x} + A_2 \frac{\partial a_{22}}{\partial x} \right) \frac{\partial a_{11}}{\partial x} \\ & + a_{11} \left(1 - \frac{a_{11}}{\text{tr} a_2} \right) \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{D}{(1-c)} \left(\frac{\partial c}{\partial x} + A_1 \frac{\partial a_{11}}{\partial x} + A_2 \frac{\partial a_{22}}{\partial x} \right) \right) \\ & - \lambda G_f (1-c) \phi \left(-\frac{f(c)}{\tilde{a}_{11}} + \frac{\tilde{a}_{11} \tilde{a}_{22}}{f(c) g(c)} \right) \end{aligned} \quad (6)$$

La deuxième est l'équation d'évolution de a_{22} :

$$\begin{aligned} \frac{\partial a_{22}}{\partial t} = & - \left(\frac{D}{(1-c)} \right) \left(\frac{\partial c}{\partial x} + A_1 \frac{\partial a_{11}}{\partial x} + A_2 \frac{\partial a_{22}}{\partial x} \right) \frac{\partial a_{22}}{\partial x} \\ & - a_{22} \left(1 + \frac{a_{11}}{\text{tr} a_2} \right) \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{D}{(1-c)} \left(\frac{\partial c}{\partial x} + A_1 \frac{\partial a_{11}}{\partial x} + A_2 \frac{\partial a_{22}}{\partial x} \right) \right) \\ & - \lambda G_f (1-c) \phi \left(-\frac{2g(c)}{\tilde{a}_{22}} + \left(\frac{\tilde{a}_{22}}{g(c)} \right)^2 + \left(\frac{\tilde{a}_{11} \tilde{a}_{22}}{f(c) g(c)} \right) \right) \end{aligned} \quad (7)$$

Le paramètre λ est l'inverse du temps de relaxation, ϕ est la fraction volumique des fibres dans la matrice et G_f est leur module d'élasticité. Les deux autres composantes \tilde{a}_{11} et \tilde{a}_{22} seront définies ci-dessous. Les deux fonctions $f(c)$ et $g(c)$ ont pour expressions :

$$f(c) = \frac{1}{A\sqrt{A(1-A)}} \left(\frac{2\sqrt{A}}{1-A} - \ln \frac{1+\sqrt{A}}{1-\sqrt{A}} \right) \quad (8)$$

$$g(c) = \frac{1}{A\sqrt{A(1-A)}} \left(-\sqrt{A} + \frac{A+1}{2} \ln \frac{1+\sqrt{A}}{1-\sqrt{A}} \right), \quad (9)$$

avec $A = c(2-c)$. La pénétration du solvant dans un milieu polymérique renforcé de fibres est généralement accompagnée du gonflement. Ce dernier est susceptible de provoquer des modifications de la structure interne en induisant des contraintes internes. Afin de tenir compte du gonflement, nous avons réécrit les équations d'évolution (4-9) en coordonnées lagrangiennes (coordonnées non déformées). Pour normaliser les équations d'évolution précédentes, nous avons utilisé les variables adimensionnelles suivantes :

$$\tilde{X} = \frac{X}{L_0} \quad (10)$$

$$\theta = \frac{t}{\tau_d} \quad (11)$$

Pour l'espace et le temps respectivement, avec

$$\tau_d = \frac{L_0^2}{D_0} \quad (12)$$

Où le paramètre D_0 représente la diffusivité constante, L_0 est une longueur caractéristique du milieu et τ_d est le temps caractéristique de la diffusion. De même, nous avons introduit les variables d'état adimensionnelles suivantes:

$$\tilde{a}_2 = \frac{a_2}{\text{tr} a_{\text{eq}(c=0)}} \quad (13)$$

$$\tilde{C} = \frac{c}{C_{\text{eq}}} \quad (14)$$

Tr désigne la trace. D'après l'analyse adimensionnelle des trois équations, on voit apparaître trois constantes :

$$De = \frac{1}{\lambda \tau_d} \quad (15)$$

$$k_1 = \frac{A_1 a_{11} \epsilon_q}{C_{\epsilon q}} \quad (16)$$

$$k_2 = \frac{A_2 a_{22} \epsilon_q}{C_{\epsilon q}} \quad (17)$$

La première constante définit le nombre de Deborah de la diffusion et les deux autres, k_1 et k_2 émergent naturellement dans les équations. Nous appliquons les conditions aux limites et initiales suivantes pour résoudre numériquement les équations sans dimensions pour la diffusion d'un solvant à travers un film d'épaisseur L_0 .

$$\theta = 0, \quad 0 < X < 1,$$

$$\tilde{C} = 0, \quad \tilde{a}_{11} = 1/3, \quad \tilde{a}_{22} = 1/3$$

$$\forall \theta, X = 0 \text{ et } X = 1,$$

$$\tilde{C} = 1, \quad \tilde{a}_{11} = \tilde{a}_{11eq(c=0)}, \quad \tilde{a}_{22} = \tilde{a}_{22eq(c=0)}$$

3. Résultats

Nous avons résolu les équations différentielles partielles en utilisant la méthode des différences finies. La figure 2 représente la variation de la masse totale absorbée en fonction du temps normalisé.

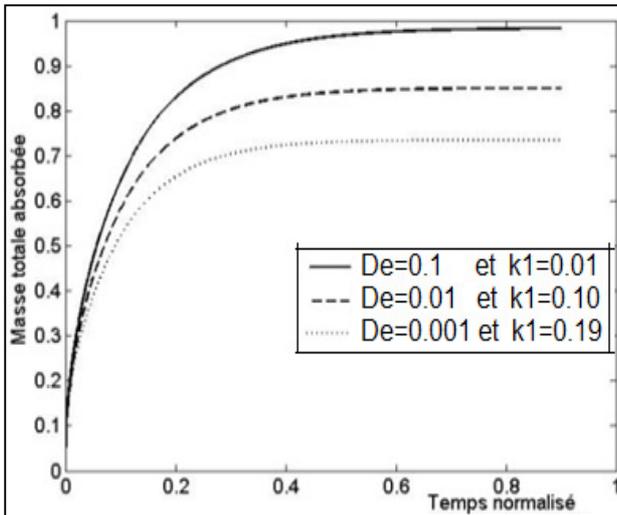


Figure 2: Masse absorbée normalisée en fonction du temps normalisé.

La figure 2 montre trois courbes calculées pour différentes valeurs du nombre de Deborah de diffusion et de constantes de couplage k_1 ($k_2 = 2k_1$). L'allure pour $De = 0,001$ montre une cinétique de la diffusion où l'effet de la dissipation prédomine celui de la diffusion sur le comportement de l'orientation des fibres. Le calcul est cependant effectué pour une constante de couplage $k_1 = 0,19$ ($k_2 = 2k_1$) qui montre que l'expression du flux de masse n'est pas purement Fickienne. Rappelons

que la théorie de Fick prédit une cinétique du gain en poids qui varie comme la racine carrée du temps, un comportement qui n'est pas observé ici. Ceci montre que la diffusion dévie de ladite cinétique et exhibe un comportement non-Fickien. Le cas Fickien est obtenu pour De et k_1 ayant de très faibles valeurs. D'autre part, l'effet des constantes de couplage est très visible quantitativement sur l'allure du gain en poids. Les constantes de couplage k_1 et k_2 sont choisies relativement faibles mais non négligeables pour le cas $De = 0,1$ et ce afin de montrer l'influence d'un flux de diffusion presque Fickien sur l'orientation des fibres. Le transport de masse devient viscoélastique dans le cas où le nombre de Deborah s'approche de l'unité.

4. Conclusion

Nous avons proposé un nouveau modèle 1D pour étudier le comportement du transport de masse d'un solvant dans un polymère renforcé de fibres. Le modèle se compose d'un ensemble d'équations d'évolution non linéaires couplées régissant l'évolution spatio-temporelle de la fraction massique du solvant et de deux variables structurelles représentant les composantes du tenseur d'ordre deux d'orientation des fibres. Nous avons étudié plus en détail le cas correspondant au processus de la diffusion 1D dans un film. Nous avons résolu numériquement ces équations en utilisant la méthode des différences finies. Parmi les résultats obtenus, on montre les profils du gain en poids pour différents nombres de Deborah. L'influence du couplage diffusion-orientation est bien visible sur le comportement de la diffusion même dans le cas des faibles valeurs du nombre de Deborah.

Références

- [1] R. Jain and L. Lee. *Fiber Reinforced Polymer (FRP) Composites for Infrastructure Applications. Focusing on Innovation, Technology Implementation and Sustainability*. Springer 2012.
- [2] M. J. Hinton, P. D. Soden, A. S. Kaddour. *Failure Criteria in Fibre-Reinforced-Polymer Composites: The World-Wide Failure Exercise*. Elsevier 2004.
- [3] A. El Afif and M. Grmela, *Non-Fickian mass transport in polymers*, J. Rheol., Volume 46, Number 3, (2002) Page 591.
- [4] A. El Afif, D. De Kee, R. Cortez, D. P. Graver, *Dynamics of complex interfaces. 2. Rheology and diffusion*, Journal of Chemical Physics. 2003.118 (22) 10227-10243.