

Effet de l'orientation des fibres sur la diffusion tridimensionnelle d'eau dans les matériaux composites à fibres de lin

Abderrazak Chilali¹, Mustapha Assarar¹, Wajdi Zouari¹, Hocine Kebir², Rezak Ayad¹

1: Université de Reims Champagne-Ardenne (URCA), Laboratoire d'Ingénierie et Sciences des Matériaux (LISM, EA 4695), IUT de Troyes 9 rue de Québec BP 396 F, 10026 TROYES CEDEX

E-mail : abderrazak.chilali@etudiant.univ-reims.fr, wajdi.zouari@univ-reims.fr, mustapha.assarar@univ-reims.fr, rezak.ayad@univ-reims.fr

2 : Université de Technologie de Compiègne, Laboratoire ROBERVAL (UMR 7337), Centre de recherche de Royallieu, BP20529, 60205 Compiègne, France

E-mail : hocine.kebir@utc.fr

Résumé

L'objectif principal de ce travail est de suivre l'absorption d'eau dans des matériaux composites constitués de résines thermoplastique ou thermodurcissable renforcées par des tissus sergé de fibres de lin. Les paramètres de diffusion sont identifiés en utilisant une procédure d'optimisation basée sur le modèle 3D de Fick. L'effet de l'orientation des fibres sur la cinétique d'absorption d'eau et sur les paramètres de diffusion de ces matériaux est également évalué. Les résultats trouvés montrent que les composites à matrice thermoplastique absorbent moins d'eau que ceux à matrice thermodurcissable. De plus, les courbes d'absorption obtenues indiquent que les masses à saturation augmentent d'une manière quasi-linéaire avec l'angle d'orientation des fibres.

Mots clefs:

Fibre de lin, vieillissement à l'eau, modèle de Fick, orientation des fibres.

1. Introduction

La sensibilité des composites à renforts naturels à l'humidité est d'une grande importance dans de nombreux secteurs notamment l'industrie nautique et l'automobile. En effet, la sensibilité de ce type de matériau à l'eau reste un inconvénient majeur à leur développement dans des structures exposées à l'humidité. Plusieurs travaux de recherche ont déjà montré que l'exposition des composites à fibres naturelles à l'humidité entraîne une variation de leurs propriétés intrinsèques [1-3]. Ainsi, la maîtrise de ces variations passe d'abord par la compréhension du comportement diffusif de ces matériaux composites en tenant compte notamment des effets tridimensionnels et leur influence sur la cinétique de diffusion.

Dans ce travail, nous étudions la diffusion d'eau dans des composites constitués de résines thermoplastique ou thermodurcissable renforcés par des

fibres de lin. En particulier, l'influence de l'orientation des fibres sur la diffusion tridimensionnelle d'eau dans ces matériaux est étudiée.

2. Protocole expérimental

2.1 Matériaux et mise en œuvre

Deux matériaux composites constitués de matrices thermoplastique et thermodurcissable renforcées par des fibres de lin sous forme de tissus sergé 2/2 ont été fabriqués en utilisant la technique de l'infusion sous vide. Les tissus de lin ont une densité surfacique et volumique de 330 g/m² et 1450 kg/m³, respectivement. La résine thermoplastique utilisée, nommée Elium, est une résine liquide de faible viscosité et sa polymérisation est initiée par 2-3% de peroxyde (Luperox A40FP-EZ9). La masse volumique de cette résine thermoplastique est égale à 1190 kg/m³. La résine thermodurcissable considérée dans cette étude est l'époxyde SR 8100 avec une masse volumique de 1158 kg/m³.

2.2 Géométrie et conditionnement des échantillons

Afin de déterminer les coefficients de diffusion ainsi que les masses à saturation des composites étudiés, des échantillons de type parallélépipédique rectangle de dimensions 20 mm×20 mm×3 mm ont été découpés à partir des plaques composites fabriquées. La fraction volumique des fibres, exprimée en pourcentage, est de 32.00 ± 1.13 et 37.10 ± 1.28 pour les composites lin-époxyde et lin-Elium, respectivement.

Le vieillissement de ces composites a été réalisé par immersion totale des échantillons dans l'eau douce à l'air ambiant. L'évolution de la prise de masse des échantillons au cours du temps de vieillissement a été mesurée régulièrement jusqu'à leur saturation complète. Pour ce faire, une balance de précision 1 mg a été utilisée.

Les mesures de masse permettent ensuite de déterminer le pourcentage d'eau absorbée M_t à l'aide de la formule suivante :

$$M_t = \frac{W_t - W_0}{W_0} \times 100(\%), \quad (1)$$

où W_0 est la masse de l'échantillon non vieilli (à $t = 0$) et W_t est la masse de l'échantillon vieilli à l'instant t .

3. Modèle de Fick

L'équation différentielle de la diffusion permettant de prédire la concentration d'humidité en fonction du temps et de l'espace est donnée par la 2^{ème} loi de Fick [4] :

$$\frac{\partial C}{\partial t} - \text{div}(\mathbf{D} \cdot \text{grad } C) = 0 \quad (2)$$

où C est la concentration en eau et \mathbf{D} le tenseur de diffusion supposé symétrique.

Dans le cas d'un matériau anisotrope, la deuxième loi de Fick s'exprime comme suit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial t} = & D_{xx} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + D_{yy} \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + D_{zz} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} + 2D_{xy} \frac{\partial^2 C}{\partial x \partial y} \\ & + 2D_{xz} \frac{\partial^2 C}{\partial x \partial z} + 2D_{yz} \frac{\partial^2 C}{\partial y \partial z}, \end{aligned} \quad (3)$$

où D_{xx} , D_{yy} et D_{zz} sont les coefficients de diffusion suivant les directions x , y et z , respectivement. D_{xy} est la contribution de l'humidité dans la direction x due à un gradient de concentration dans la direction y . Cette définition est également valable pour les coefficients D_{xz} et D_{yz} .

Dans le cas où les directions principales 1, 2, 3 du stratifié coïncident avec les directions de référence x , y et z (figure 1a), l'équation (3) devient :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_1 \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + D_2 \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + D_3 \frac{\partial^2 C}{\partial z^2}, \quad (4)$$

où D_1 , D_2 et D_3 sont les coefficients de diffusion dans les directions principales du stratifié.

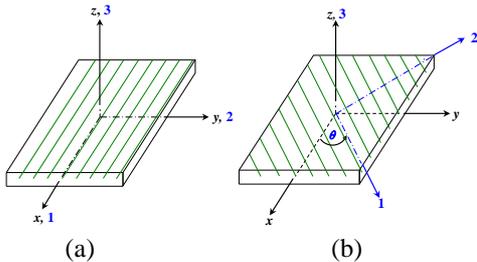


Figure 1 : Axes du stratifié coïncidant avec les axes de référence, b) axes du stratifié font un angle θ avec les axes de référence.

En intégrant l'équation (4) sur le volume de la plaque, la solution analytique peut s'écrire sous la forme suivante [4] :

$$\frac{M_t}{M^\infty} = 1 - \left(\frac{8}{\pi^2} \right)^3 \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\exp(-f(t))}{((2i+1)(2j+1)(2k+1))^2} \quad (5)$$

$$f(t) = \pi^2 t \left(D_1 \left(\frac{2i+1}{L} \right)^2 + D_2 \left(\frac{2j+1}{l} \right)^2 + D_3 \left(\frac{2k+1}{h} \right)^2 \right)$$

où M_t et M^∞ sont respectivement la prise de masse à l'instant t et à saturation de l'échantillon.

Dans le cas d'un stratifié orienté d'un angle θ par rapport à la direction de référence x (figure 1b), l'identification des coefficients D_{xx} , D_{yy} , D_{zz} et D_{xy} n'est pas possible à partir de la solution analytique (5) puisque celle-ci est exprimée dans les axes du stratifié (1, 2, 3). En revanche, ces coefficients (D_{xx} , D_{yy} , D_{zz} et D_{xy}) peuvent être déduits à partir de D_1 , D_2 et D_3 à l'aide des expressions suivantes :

$$\begin{cases} D_{xx} = D_1 \cos^2(\theta) + D_2 \sin^2(\theta) \\ D_{xy} = (D_1 - D_2) \sin(\theta) \cos(\theta) \\ D_{yy} = D_1 \sin^2(\theta) + D_2 \cos^2(\theta) \\ D_{zz} = D_3 \end{cases} \quad (6)$$

4. Procédure d'optimisation

L'identification des coefficients de diffusion a été menée en minimisant la fonction objectif q représentant les écarts entre la teneur en humidité prédite par le modèle analytique de Fick et les mesures expérimentales :

$$q = \sum_{k=1}^n (M_A(t_k) - M_E(t_k))^2 \quad (k = 1, 2, \dots, n), \quad (7)$$

où $M_A(t_k)$ est la prise d'eau prédite par l'équation (5) et $M_E(t_k)$ représente les mesures expérimentales.

Les coefficients de diffusion D_1 , D_2 et D_3 sont déterminés en minimisant la fonction q par la méthode déterministe de Nelder et Mead [5].

5. Résultats et discussion

5.1 Identification des coefficients de diffusion à partir du modèle de Fick 3D

La figure 2 compare les résultats expérimentaux et analytiques des composites lin-époxyde et lin-Elium orientés à 0° . Ces résultats montrent que le modèle de Fick 3D décrit convenablement les courbes de sorption d'eau au sein de ces composites. Le tableau 1 résume les paramètres de diffusion déduits de la procédure d'optimisation.

Une légère différence est observée entre les coefficients de diffusion D_1 et D_2 bien que l'armure sergé soit équilibrée. Ceci peut être lié aux interactions entre les molécules d'eau absorbée dans chaque direction.

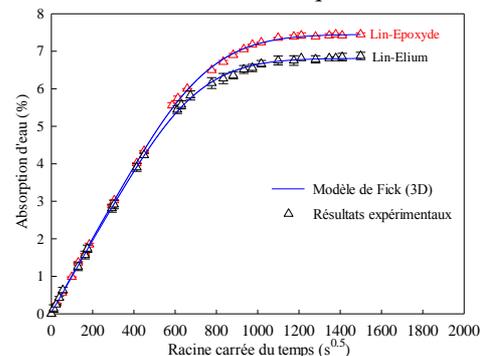


Figure 2. Courbe d'absorption d'eau des composites lin-Elium et lin-époxyde orientés à 0° .

Pour mieux comprendre l'effet tridimensionnel de la cinétique de diffusion d'eau dans les matériaux de l'étude, l'effet de l'orientation des fibres est considéré dans le paragraphe suivant.

Tableau 1. Paramètres de diffusion d'eau déduit du modèle de Fick 3D

Matériau	D_1 ($10^{-6} \times \text{mm}^2/\text{s}$)	D_2 ($10^{-6} \times \text{mm}^2/\text{s}$)	D_3 ($10^{-6} \times \text{mm}^2/\text{s}$)	M^∞ (%)
Lin-époxyde	0,93	0,83	2,76	7,45
Lin-Elium	0,88	0,72	2,72	6,87

a. Influence de l'orientation des fibres

Pour analyser l'effet de l'orientation des fibres sur les paramètres de diffusion, des essais supplémentaires ont été effectués sur des échantillons de dimensions 20x20x3 mm³ avec différentes orientations des fibres : 0, 15, 30 et 45°. Les coefficients de diffusion globaux D_{xx} , D_{yy} , D_{zz} et D_{xy} ont été calculés en utilisant les expressions (6). Afin de vérifier si les coefficients de diffusion globaux permettent de prédire correctement le comportement diffusif des échantillons lin-époxyde et lin-Elium, une modélisation par éléments finis a été considérée en utilisant le code commercial Abaqus.

Les résultats de la figure 3 montrent un bon accord entre les résultats expérimentaux et ceux déduits de l'analyse par éléments finis. Il apparaît également que la vitesse de diffusion augmente avec l'orientation des fibres. Cette augmentation est due essentiellement aux effets de bords qui s'accroissent avec l'orientation des fibres. La variation de la vitesse en fonction de l'orientation des fibres justifie la différence observée entre D_1 et D_2 . En effet, si ces coefficients de diffusion étaient égaux, la cinétique de diffusion serait la même pour toute orientation des fibres c'est-à-dire $D_{xx}=D_1$, $D_{yy}=D_2$ et $D_{xy}=0$ quelle que soit l'orientation des fibres. Or, les courbes de sorption d'eau montrent clairement que la cinétique de diffusion varie en fonction de l'orientation des fibres. D'autre part, la masse à saturation augmente avec l'orientation des fibres et ceci peut être attribué à l'augmentation de la vitesse de diffusion.

6. Conclusion

L'objectif principal de ce travail est d'évaluer l'effet de l'orientation des fibres sur la cinétique d'absorption d'eau et sur les paramètres de diffusion des matériaux lin-époxyde et lin-Elium. Les résultats obtenus montrent que les composites à matrice thermoplastique absorbent moins d'eau que ceux à matrice thermodurcissable. De plus, en augmentant l'angle d'orientation des fibres, les courbes d'absorption indiquent que les masses à saturation évoluent d'une manière quasi-linéaire. Ceci montre une forte corrélation entre la vitesse de diffusion et la masse à saturation des composites étudiés.

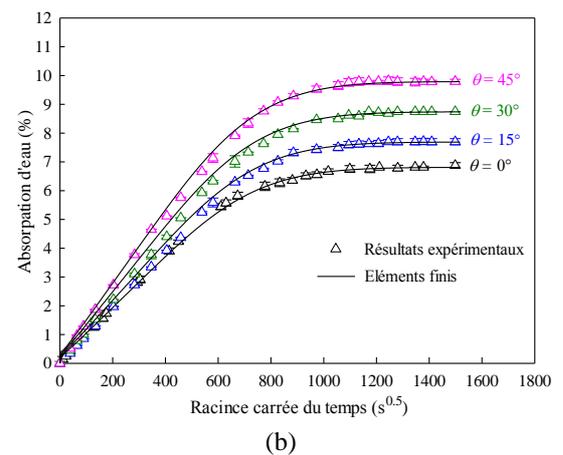
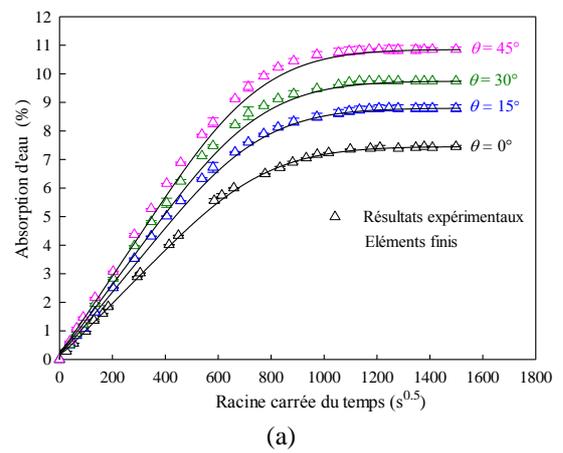


Figure 3. Évolution de l'absorption d'eau en fonction de la racine carrée du temps pour différentes orientations des fibres: a) lin-Epoxyde, b) lin-Elium

Références

- [1] A. Le Duigou, P. Davies, C. Baley, Replacement of Glass/Unsaturated Polyester Composites By Flax/PLLA Biocomposites: Is It Justified?, *Journal of Biobased Materials and Bioenergy* (2011), 5 : 1–17.
- [2] M. Assarar, D. Scida, A. El Mahi, C. Poilâne, R. Ayad, Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: Flax–fibres and glass–fibres, *Materials and Design* (2011), 32: 788–795.
- [3] A. Le Duigou, P. Davies, C. Baley, Seawater ageing of flax / poly (lactic acid) biocomposites. *Polymer Degradation and Stability* (2009), 94:1151–1162.
- [4] J. Crank, *The mathematic of diffusion*, Oxford: Clarendon; 1975.
- [5] J.A. Nelder, R. Mead, A Simplex Method for Function Minimization, *The Computer Journal* (1965), 7: 308–313.