

## **Simulation de la diffusion d'eau dans un assemblage bi-matériaux : quelle condition à l'interface ?**

### *Simulation of the diffusion of water in a bi-material assembly: what condition at the interface?*

**Julie Cocaud<sup>1,2</sup>, Amandine Céline<sup>1</sup>, Sylvain Fréour<sup>1</sup>, Frédéric Jacquemin<sup>1</sup>, Patrick de Luca<sup>2</sup>**

1 : Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (GeM),  
Université de Nantes, Centrale Nantes, UMR CNRS 6183,  
58 rue Michel Ange, 44600 Saint-Nazaire, France

julie.cocaud@univ-nantes.fr ; amandine.celino@univ-nantes.fr ; sylvain.freour@univ-nantes.fr ; frederic.jacquemin@univ-nantes.fr

2 : ESI Group,

Aero Business Center - Aeroparc, 25 rue Marcel Issartier, 33700 Mérignac, France  
julie.cocaud@esi-group.com ; patrick.de.luca@esi-group.com

### **Résumé**

Le but de ce travail est de modéliser la cinétique obtenue pour un matériau multi-composites cocuits à partir de celles identifiées pour chacun des matériaux seuls. La cinétique simulée sera comparée à des données expérimentales. Une campagne expérimentale a été mise en place, dans des conditions environnementales sévères (70°C, 85 % H.R.). Elle a permis d'obtenir la cinétique des matériaux composites A et B seuls ainsi que celle du bi-matériaux copolymérisé AB. Afin de prédire la diffusion d'eau au sein d'un assemblage multi-matériaux, une approche numérique basée sur la méthode des différences finies (MDF) a été développée. Cette dernière prend en compte deux conditions à l'interface : un saut de teneur en eau et une continuité du flux massique d'eau. Une simulation initiale a sous-estimé les résultats expérimentaux. Mais, en prenant en compte la variabilité des paramètres diffusifs des mono-matériaux, il a été possible de se rapprocher davantage de la cinétique expérimentale. Puis, d'encore meilleurs résultats ont été obtenus en considérant ensuite l'existence d'une interphase entre les couches de composites.

### **Abstract**

The aim of this work is to model the kinetics obtained for a co-cured multi-composite material from those identified for each of the isolated materials. The simulated kinetics will be compared with experimental data. Two experimental campaigns were carried out under the same environmental conditions (70°C, 85% H.R.): the first one enabled to obtain the kinetics of composite materials A and B, and the second, the one of the copolymerized bi-material AB. In order to predict water diffusion within multi-material assemblies, a numerical approach based on the finite difference method (FDM) has been developed and optimized. In the end, a good correlation was obtained between the experimental results and the numerical simulations. It takes into account two conditions at the interface: a jump in water content and a continuity of the mass flow of water. An initial simulation underestimated the experimental results. But considering the variability of the diffusive parameters of mono-materials, it has been possible to get closer to experimental kinetics. Then, even better results were obtained by considering an interphase between the composite layers.

**Mots Clés :** Diffusion d'eau, multi-matériaux, interface, identification non-Fickienne, différences finies

**Keywords:** Water diffusion, multi-material, interface, non-Fickian identification, finite differences

## **1. Introduction**

Les matériaux composites à matrice polymère (CMPs) renforcés de fibres de verre ou de carbone, absorbent de l'eau via leur matrice organique hydrophile, lorsqu'ils sont soumis à un environnement humide. Cette absorption d'eau peut entraîner des modifications des propriétés de ces matériaux, altérant ainsi leurs performances, de manière réversible ou non [1]. Il est donc important de pouvoir connaître l'évolution de l'absorption d'eau d'un matériau composite au cours de sa durée de vie en service à travers l'étude de sa cinétique de diffusion. La connaissance de cette cinétique et l'identification de certains paramètres de diffusion permettent, dans un second temps, d'accéder aux

contraintes internes d'origine hygroscopique générées, entre autres, par le gonflement différentiel. Lorsque deux CMPs sont assemblés dans une structure composite, la question du mécanisme de diffusion de l'eau à l'interface entre ces deux matériaux se pose. Cette contribution vise justement à proposer et à valider des méthodologies pour la modélisation des conditions d'interfaces dans ce type d'assemblages composites.

Afin de répondre à cette question, il est tout d'abord nécessaire de pouvoir simuler correctement la cinétique de diffusion d'un seul matériau composite. Le modèle le plus couramment utilisé est celui de Fick [2]. Il permet de représenter la cinétique composée d'une partie linéaire ascendante, suivie d'une inflexion et d'un plateau de saturation. Ce type de cinétique est dite « Fickienne ». Mais, si la cinétique présente une seconde partie linéaire ascendante entre l'inflexion et le plateau, il s'agit d'une cinétique non-Fickienne. Habituellement, deux modèles peuvent être utilisés pour décrire ce deuxième type de cinétique : le modèle de type Langmuir présenté par Carter et Kibler [3] et un modèle qui comprend deux processus de diffusion de Fick [4,5,6,7], appelé ici modèle « Dual-Fick ».

Lorsqu'on passe à l'échelle de l'assemblage bi-matériaux, il est nécessaire de représenter avec précision l'interface entre ces deux matériaux. La méthode des différences finies (MDF) a déjà été utilisée pour modéliser ce phénomène [8,9,10]. Elle consiste à effectuer une discrétisation spatiale et temporelle, pour chaque matériau, permettant ainsi de représenter la frontière commune, autrement dit l'interface.

Le travail ici présenté a pour but de modéliser au mieux la cinétique de diffusion d'eau pour un bi-matériaux, à partir de celles obtenues séparément pour les matériaux composites qui le constituent. Pour ce faire, une campagne expérimentale a été mise en place pour obtenir les cinétiques des CMPs seuls et d'un assemblage des deux. Les deux mono-matériaux composites étudiés présentant tous deux des comportements diffusifs non-Fickiens, la diffusion d'eau sera représentée par le modèle Dual-Fick. Le problème sera discrétisé et adapté à un bi-matériaux en utilisant la MDF. Cette étude sera divisée en trois parties. La première présentera les essais expérimentaux, la seconde exposera les méthodes numériques nécessaires à la réalisation du modèle et la troisième confrontera les résultats expérimentaux aux différentes simulations effectuées.

## 2. Campagne expérimentale

Dans cette section seront présentés les matériaux étudiés, ainsi que la mise en œuvre des éprouvettes et les essais expérimentaux réalisés.

### 2.1 Matériaux

Deux mono-matériaux composites sont étudiés. Le premier, le matériau composite A, est un tissu composé de fibres de verre orientées à  $\pm 45^\circ$  et d'une résine époxy (appelée résine A). Le second, le matériau composite B, est un composite unidirectionnel (UD) également composé de fibres de verre et d'une résine époxy (résine B). Il est à noter que les résines A et B sont différentes. Un assemblage multi-matériaux a été réalisé avec ces deux types de matériaux composites : un bi-matériaux AB, composé d'une couche de tissu A et d'une couche de composite UD B, cocuites ensemble (Fig. 1).

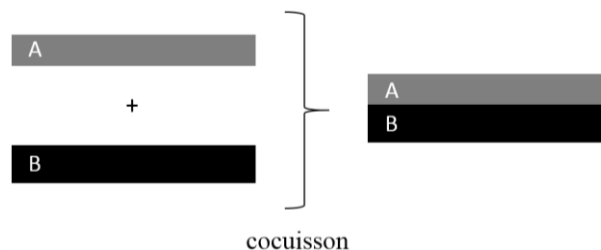


Fig. 1. Schématisation de la mise en œuvre du bi-matériaux AB.

## 2.2 Échantillons

Six éprouvettes de matériau composite A, neuf de matériau composite B et trois de multi-matériaux AB ont été réalisées, dans le but d'étudier leurs comportements diffusifs. Toutes les éprouvettes ont été produites suivant le même cycle de cuisson. Leurs épaisseurs sont minces comparées aux autres dimensions, afin d'avoir une diffusion unidimensionnelle. Pour la confection de l'assemblage AB, les deux couches de matériaux différents ont bien la même surface  $S$ .

Trois petites éprouvettes supplémentaires de bi-matériaux AB ont été prélevées dans les mêmes plaques qui ont servi à réaliser les trois autres. Ces éprouvettes ont permis de mesurer les épaisseurs de couches de matériaux composites A et B au sein du bi-matériaux AB au microscope électronique à balayage (MEB).

## 2.3 Essai de vieillissement humide

Dans un premier temps, une étape de séchage à 70°C des éprouvettes a été mise en place, afin d'obtenir un champ de teneur en eau uniforme en leur sein. Un suivi gravimétrique régulier a permis de s'assurer de la stabilisation des masses des échantillons. Les échantillons ont ensuite été placés dans une enceinte climatique thermo-hygro-réglée à 70°C et 85 % H.R. (conditions sévères mises en œuvre pour certifier les matériaux à applications aéronautiques). Ils ont à nouveau été pesés régulièrement, cette fois-ci, afin de déterminer les cinétiques de diffusion des matériaux composites A et B et du bi-matériaux AB.

Pour un échantillon donné, de masse initiale  $M_0$  (obtenue à l'issue du séchage) il est en effet possible de déterminer l'évolution de la teneur en eau globale  $C_{exp}(t)$ , calculée à l'aide de la formule ci-dessous

$$C_{exp}(t) = \frac{M(t) - M_0}{M_0} \quad (\text{Eq. 1})$$

où  $M(t)$  est la masse macroscopique de l'échantillon à l'instant  $t$ .

Les courbes de reprise en eau conventionnelles s'obtiennent en traçant l'évolution de la teneur en eau globale en fonction de la racine carrée du temps. Dans le cas où l'on souhaite comparer des cinétiques obtenues pour des éprouvettes de différentes épaisseurs, les reprises en eau globales sont tracées en fonction de la racine carrée du temps divisée par l'épaisseur de l'éprouvette.

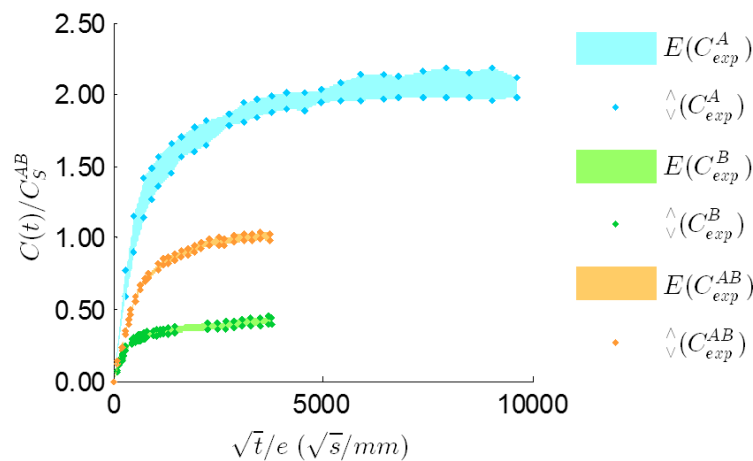


Fig. 2. Étendues  $E$  et bornes supérieures et inférieures  $\hat{\wedge}_{\hat{\vee}}$  des cinétiques expérimentales obtenues pour les matériaux composites A et B et pour le bi-matériaux AB, divisées par la teneur en eau à saturation moyenne du bi-matériaux AB.

La figure (Fig. 2) présente les étendues des cinétiques expérimentales adimensionnées, obtenues pour les matériaux composites A et B et le bi-matériaux AB. Étant donné le nombre d'éprouvettes testées (au nombre de 18, en tout), il a été choisi de représenter les bornes inférieures et supérieures des reprises en eau globales plutôt que l'ensemble des cinétiques obtenues. Comme on peut l'observer, les matériaux composites A et B ont tous deux un comportement diffusif non-Fickien. C'est aussi le cas du bi-matériaux AB, dont le faisceau de cinétiques expérimentales est bien compris entre ceux des éprouvettes de tissu A et d'UD B.

## 2.4 Observations MEB

Les trois petites éprouvettes de bi-matériaux ont été séchées à 70°C, aussi longtemps que celles réalisées pour l'essai de vieillissement. Elles ont ensuite été enrobées et polies dans le but de pouvoir effectuer des observations par microscopie électronique à balayage (MEB). Ceci a permis d'obtenir les épaisseurs de couches ( $e$ ) de matériaux A et B dans le bi-matériaux AB, voir (Tab. 1).

Matériau	$e$ (mm)	proportion
A	$0,525 \pm 0,015$	36 %
B	$0,928 \pm 0,014$	64 %

Tab. 1. Épaisseurs (moyennes et écarts types) et proportions de matériaux A et B dans le bi-matériaux AB.

## 3. Méthodes numériques

Cette section est consacrée aux méthodes numériques employées dans le but de modéliser la diffusion d'eau de type Dual-Fickienne dans un assemblage bi-matériaux.

### 3.1 Problème de diffusion Dual-Fickien

Considérons le problème de diffusion non-Fickienne et unidirectionnelle dans l'épaisseur  $e$  d'une plaque mince. Le modèle Dual-Fick, adapté pour reproduire ce type de cinétique, repose sur l'hypothèse que deux processus de diffusion Fickiens se produisent en parallèle avec différents champs de teneurs en eau  $c_1$  et  $c_2$ . Le champ de teneur en eau  $c(x, t)$  peut ainsi s'écrire

$$c = c_1 + c_2 \quad (\text{Eq. 2})$$

Chaque processus Fickien  $i \in \{1, 2\}$  possède donc son propre coefficient de diffusion  $D_i$  et une teneur en eau globale à saturation  $C_{Si}$ . Ainsi, la somme de  $C_{S1}$  et  $C_{S2}$  est égale à la teneur en eau globale à saturation du matériau, notée  $C_S$ . Cela nous amène à résoudre deux problèmes de Fick, tels que

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = D_i \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} \quad (\text{Eq. 3})$$

$$c_i(x, 0) = 0 \quad (\text{Eq. 4})$$

$$c_i\left(-\frac{e}{2}, t\right) = c_i\left(\frac{e}{2}, t\right) = C_{Si} \quad (\text{Eq. 5})$$

où l'équation (Eq. 3) correspond à la seconde loi de Fick, l'équation (Eq. 4) aux conditions initiales et l'équation (Eq. 5) aux conditions aux limites.

### 3.2 Discrétisation du problème

On cherche à discrétiser l'intervalle spatial  $[-e/2, e/2]$  en  $N$  nœuds de coordonnées  $x$  régulièrement espacés. On note  $\Delta x$  le pas d'espace. Le temps est discrétisé en intervalles de pas constants  $\Delta t$ . La

discrétisation de l'équation (Eq. 3) au nœud en  $x$  et à l'itération  $t+\Delta t$ , par la méthode de différences finies, selon une approche implicite mène à

$$\left(\frac{\partial c_i}{\partial t}\right)_x^{t+\Delta t} = D_i \left(\frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2}\right)_x^{t+\Delta t} \quad (\text{Eq. 6})$$

Puis, en ayant recours à un schéma arrière d'ordre 1 pour évaluer la dérivée temporelle et un schéma centré d'ordre 2 pour la dérivée seconde en espace, on obtient ainsi

$$\frac{c_{i_x}^{t+\Delta t} - c_{i_x}^t}{\Delta t} = D_i \frac{c_{i_{x+\Delta x}}^{t+\Delta t} - 2c_{i_x}^{t+\Delta t} + c_{i_{x-\Delta x}}^{t+\Delta t}}{\Delta x^2} \quad (\text{Eq. 7})$$

Et, en posant  $\lambda_i = D_i \frac{\Delta t}{\Delta x^2}$ , la teneur en eau à l'itération  $t+\Delta t$  est donnée par

$$-\lambda_i c_{i_{x-\Delta x}}^{t+\Delta t} + (1 + 2\lambda_i) c_{i_x}^{t+\Delta t} - \lambda_i c_{i_{x+\Delta x}}^{t+\Delta t} = c_{i_x}^t \quad (\text{Eq. 8})$$

### 3.3 Cas d'un assemblage multi-matériaux

Considérons un bi-matériaux AB composé d'une couche de matériau A et d'une de matériau B tous deux Dual-Fickiens. Le matériau A a pour paramètres diffusifs le jeu  $(D_1^A, C_{S1}^A, D_2^A, C_{S2}^A)$  tandis que les paramètres diffusifs du matériau B sont  $(D_1^B, C_{S1}^B, D_2^B, C_{S2}^B)$ .

#### Discrétisation du problème

L'épaisseur  $e^A$  du matériau A est discrétisée en  $N^A$  nœuds, régulièrement espacés par le pas spatial  $\Delta x^A$  et, réciproquement, celle du matériau B (notée  $e^B$ ) est discrétisée en  $N^B$  nœuds, régulièrement espacés de  $\Delta x^B$ . Il y a donc en tout  $N = N^A + N^B$  nœuds à travers l'épaisseur totale du bi-matériaux AB, telle que  $e^{AB} = e^A + e^B$ . Afin de représenter la discontinuité de la teneur en eau à l'interface, il existe deux nœuds coïncidents appartenant à chaque couche de matériau : le nœud  $N^A$  pour le matériau A et le nœud  $N^A+1$  pour le matériau B, voir (Fig. 3).

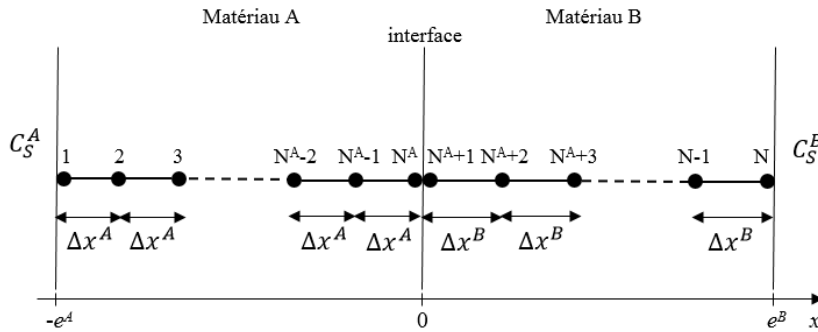


Fig. 3. Représentation schématique d'un bi-matériaux, où  $N = N^A + N^B$ .

L'équation (Eq. 8) de la discrétisation du problème Dual-Fickien, appliquée au problème bi-matériaux conduit à

$$-\lambda_i^A c_{i_{x-\Delta x}}^{t+\Delta t} + (1 + 2\lambda_i^A) c_{i_x}^{t+\Delta t} - \lambda_i^A c_{i_{x+\Delta x}}^{t+\Delta t} = c_{i_x}^t \quad \text{pour } -e^A \leq x \leq 0 \quad \text{avec } \lambda_i^A = D_i^A \frac{\Delta t}{(\Delta x^A)^2} \quad (\text{Eq. 9})$$

$$-\lambda_i^B c_{i_{x-\Delta x}}^{t+\Delta t} + (1 + 2\lambda_i^B) c_{i_x}^{t+\Delta t} - \lambda_i^B c_{i_{x+\Delta x}}^{t+\Delta t} = c_{i_x}^t \quad \text{pour } 0 \leq x \leq e^B \quad \text{avec } \lambda_i^B = D_i^B \frac{\Delta t}{(\Delta x^B)^2} \quad (\text{Eq. 10})$$

où  $i \in \{1, 2\}$  en fonction du processus Fickien étudié.

### Conditions aux limites

À la frontière externe de chaque matériau, on applique la valeur de la teneur en eau globale à saturation propre à chaque processus Fickien  $i$

$$\begin{cases} c_i = C_{Si}^A & \text{en } x = -e^A \\ c_i = C_{Si}^B & \text{en } x = e^B \end{cases} \quad (\text{Eq. 11})$$

### Conditions à l'interface

Il existe deux conditions à respecter à l'interface :

- La condition de saut de teneur en eau :

À l'interface entre les deux couches de matériaux (en  $x = 0$ , cf. (Fig. 3)), il y a une discontinuité de la concentration en eau. En effet, à saturation, différents matériaux ont une teneur en eau différente, ce qui entraîne

$$c_{iN^A} - \gamma c_{iN^{A+1}} = 0 \quad \text{avec} \quad \gamma = \frac{C_S^A}{C_S^B} \quad (\text{Eq. 12})$$

où  $c_{iN^A}$  est la teneur en eau locale du processus Fickien  $i$ , à l'interface dans le matériau A (au nœud  $N^A$ ),  $c_{iN^{A+1}}$  est celle à l'interface dans le matériau B (au nœud  $N^{A+1}$ ) et les paramètres  $(C_S^A, C_S^B)$  sont les teneurs en eau globales à saturation des matériaux A et B.

- La condition de continuité du flux massique :

Le flux de matière sortant du matériau A doit être égal au flux entrant dans le matériau B, soit

$$D_i^A \frac{\partial m_{eau i}}{\partial x} \Big|_{x=0} = D_i^B \frac{\partial m_{eau i}}{\partial x} \Big|_{x=0} \quad (\text{Eq. 13})$$

avec  $m_{eau i}$  la masse d'eau locale due au processus de diffusion  $i$ .

Étant donné que la teneur en eau locale peut s'exprimer en fonction de la masse d'eau telle que

$$c_i = \frac{m_{eau i}}{m_0} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} m_0 = \rho^A \Delta x^A S & \text{pour } x \in [-e_A, 0] \\ m_0 = \rho^B \Delta x^B S & \text{pour } x \in [0, e_B] \end{cases} \quad (\text{Eq. 14})$$

où  $m_0$  est la masse élémentaire qui dépend de la densité  $\rho$  et du pas d'espace  $\Delta x$  propre à chaque couche de matériau (A ou B) et de la section commune à ces couches ( $S$ ), on obtient après reformulation de l'équation (Eq. 13) en teneur locale et discrétisation

$$D_i^A \rho^A \Delta x^A S \frac{c_{iN^A} - c_{iN^{A-1}}}{\Delta x^A} = D_i^B \rho^B \Delta x^B S \frac{c_{iN^{A+2}} - c_{iN^{A+1}}}{\Delta x^B} \quad (\text{Eq. 15})$$

Soit, après simplification, l'équation (Eq. 16) qui en résulte

$$-c_{iN^{A-1}} + c_{iN^A} + \alpha c_{iN^{A+1}} - \alpha c_{iN^{A+2}} = 0 \quad \text{avec} \quad \alpha = \frac{D_i^B \rho^B}{D_i^A \rho^A} \quad (\text{Eq. 16})$$

### Déduction de la teneur en eau globale

Le problème multi-matériaux présenté ci-dessus permet ainsi de calculer le champ de teneur en eau locale dans l'épaisseur du bi-matériaux. Connaissant les épaisseurs  $e$  et les masses volumiques  $\rho$  des mono-matériaux et de l'assemblage, il est possible d'en déduire l'évolution de la teneur en eau globale dans le bi-matériaux AB ( $C^{AB}$ ), en utilisant la formule d'homogénéisation suivante

$$C^{AB} = \frac{\rho^A}{\rho^{AB}} \frac{e^A}{e^{AB}} C^A + \frac{\rho^B}{\rho^{AB}} \frac{e^B}{e^{AB}} C^B \quad (\text{Eq. 17})$$

avec  $C^A$  et  $C^B$ , les teneurs en eau globales des couches de matériaux A et B, calculées en intégrant la teneur en eau locale totale  $c = c_1 + c_2$ , sur l'épaisseur de couche étudiée.

### 3.4 Méthode d'identification des paramètres diffusifs mono-matériaux

La modélisation de la diffusion d'eau dans un assemblage multi-matériaux ici présentée nécessite de connaître les paramètres diffusifs des mono-matériaux. Une solution analytique au problème Fickien a été donnée par Crank [11]. Cette dernière est adaptable au cas d'une diffusion Dual-Fickienne correspondante au problème présenté par les équations (Eq. 3-4-5). Voici la solution analytique qui est donc en accord avec ce problème

$$C_{ana}(t) = \sum_{i=\{1,2\}} \left[ \left( 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left(-D_i \left(\frac{2n+1}{e}\right)^2 \pi^2 t\right) \right) \times C_{Si} \right] \quad (\text{Eq. 18})$$

Pour une éprouvette donnée, il est ainsi possible de déterminer ses paramètres diffusifs ( $D_1$ ,  $C_{S1}$ ,  $D_2$ ,  $C_{S2}$ ), via un algorithme d'optimisation. Il suffit en effet d'identifier les valeurs qui minimisent la quantité  $q$  suivante

$$q = \sum_j [C_{ana}(t_j) - C_{exp}(t_j)]^2 \quad (\text{Eq. 19})$$

où  $C_{ana}(t_j)$  est la teneur en eau globale calculée au temps  $t_j$  suivant la formule analytique (Eq. 18) et  $C_{exp}(t_j)$  est la teneur en eau globale expérimentale obtenue à partir d'un relevé gravimétrique de l'éprouvette au temps  $t_j$  et calculée à l'aide de l'équation (Eq. 1).

## 4. Résultats

### 4.1 Adimensionnement des résultats

Pour des raisons de confidentialité, les résultats présentés sont adimensionnés. Comme pour la figure (Fig. 2), les reprises hydriques sont divisées par la moyenne des teneurs en eau globales à saturation identifiées pour les trois cinétiques expérimentales de bi-matériaux AB (selon la méthode décrite en 3.4), notée  $C_S^{AB}$ .

### 4.2 Simulation initiale avec interface parfaite et paramètres mono-matériaux moyens

Une première simulation a été effectuée en utilisant le modèle de diffusion d'eau dans un bi-matériaux présenté auparavant. Les paramètres d'entrée sont les épaisseurs des couches de matériaux composites A et B référencées dans le tableau (Tab. 1) ainsi que les paramètres diffusifs Dual-Fickiens moyens obtenus pour les cinétiques des différentes éprouvettes de composites A et B. En

effet, six cinétiques expérimentales ont été obtenues pour le tissu A et neuf pour l'UD B. Pour chacune des cinétiques, la procédure d'identification présentée dans la sous-section 3.4 a été appliquée.

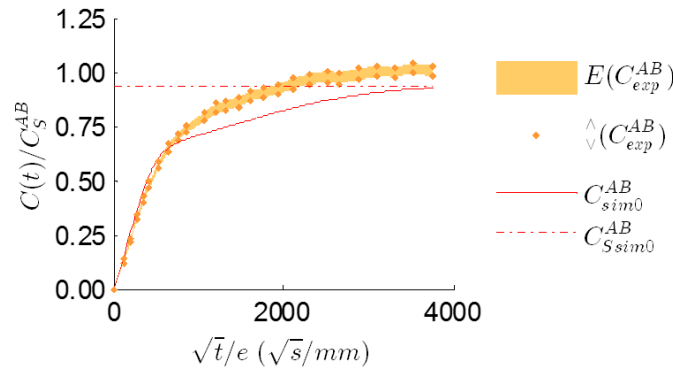


Fig. 4. Simulation initiale : résultats expérimentaux et simulés pour le bi-matériaux AB.

La figure (Fig. 4) présente l'étendue ( $E$ ) et les bornes extrêmes ( $\wedge$ ) des cinétiques expérimentales du bi-matériaux AB, ainsi que l'évolution de la teneur en eau globale simulée via le modèle différences finies  $C_{sim0}^{AB}$  associée à la teneur à saturation calculée correspondante,  $C_{Ssim0}^{AB}$ . Cette modélisation ne permet pas de reproduire correctement les cinétiques expérimentales. Bien qu'elle permette de représenter correctement la première phase linéaire de la cinétique, elle sous-estime la seconde phase linéaire de la cinétique expérimentale.

### 4.3 Optimisation des paramètres mono-matériaux

Une première piste exploitée pour améliorer les résultats obtenus est de prendre en compte la variabilité des résultats obtenus pour les cinétiques des composites A et B seuls. Ainsi, une optimisation a été effectuée afin d'identifier les paramètres mono-matériaux qui permettent de reproduire au mieux la cinétique du bi-matériaux.

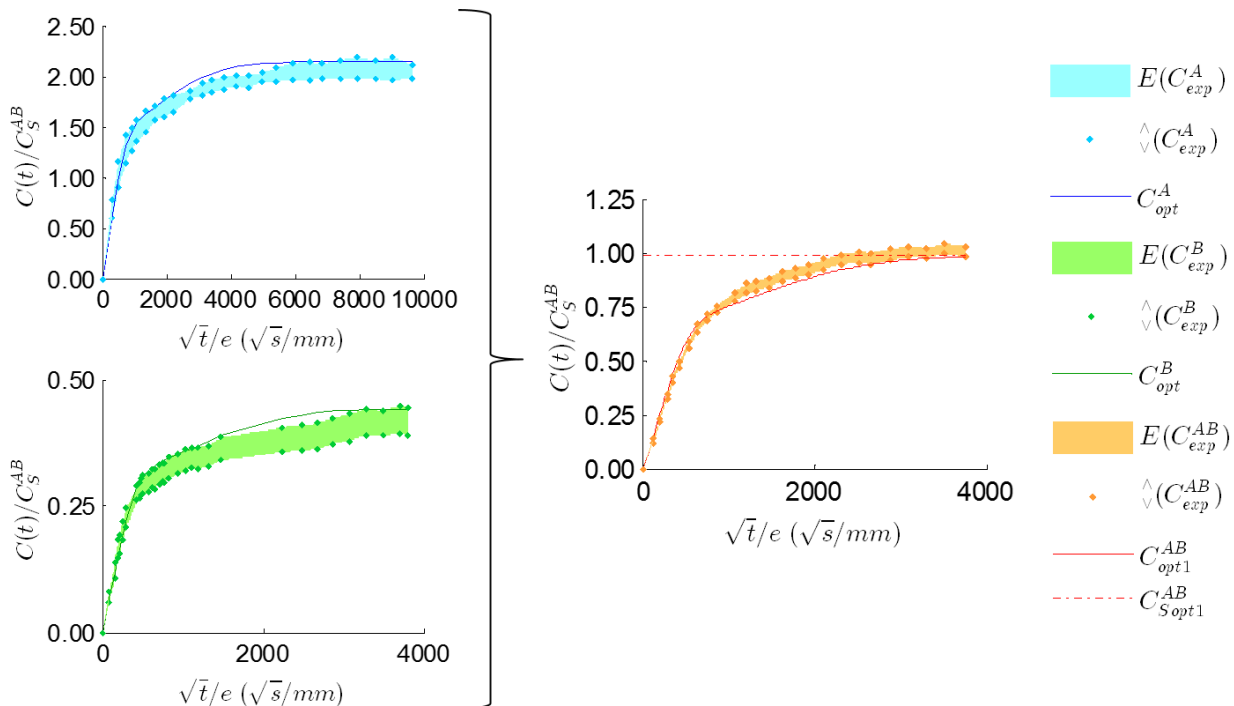


Fig. 5. Optimisation des paramètres mono-matériaux : résultats expérimentaux et simulés pour les composites A et B et le bi-matériaux AB.



Les nouveaux résultats obtenus sont présentés figure (Fig. 5). Les cinétiques obtenues pour les deux mono-matériaux à partir des paramètres optimisés, notées  $C_{opt}^A$  et  $C_{opt}^B$ , correspondent plutôt bien aux cinétiques obtenues expérimentalement. La cinétique calculée par le modèle bi-matériaux à partir de ces paramètres ( $C_{opt1}^{AB}$ ) permet de bien mieux reproduire les résultats expérimentaux. En effet, elle se rapproche de la borne inférieure des résultats expérimentaux obtenus et la teneur à saturation alors calculée ( $C_{Sopt1}^{AB}$ ) est presque égale à celle obtenue en moyenne à partir des cinétiques expérimentales.

#### 4.4 Optimisation du modèle avec ajout d'une interphase

Le bi-matériaux AB étant obtenu en cocuisant ensemble des couches de matériaux composites A et B crues, il existe probablement une interphase plutôt qu'une interface parfaite. C'est-à-dire qu'il y aurait une zone intermédiaire issue d'un mélange des deux résines A et B, présentant un gradient de propriétés susceptible d'influencer la diffusion d'eau dans le bi-matériaux. En effet, les formulations des résines époxy A et B sont différentes sur le plan de la polarité et des densités de réseaux, il y aurait donc certainement un troisième réseau polymérique de très faible épaisseur entre les deux couches de composites. Cependant, l'épaisseur et le comportement diffusif de cette interphase sont inconnus.

Une nouvelle version du modèle a été réalisée de façon à suivre cette hypothèse. Pour ce faire, une interphase de faible épaisseur ( $< 100 \mu\text{m}$ ) composée d'une couche de résine A et d'une de résine B a été placée entre les couches de matériaux composites A et B (en veillant à conserver l'épaisseur de bi-matériaux macroscopique). Il n'a pas été possible de caractériser expérimentalement l'épaisseur de l'interphase. Différentes valeurs de ce paramètre ont été prises en compte lors d'essais numériques. Les paramètres diffusifs de la résine A ont été estimés à partir de ceux obtenus pour le composite A. Ceux de la résine B ont quant à eux été obtenus suite à une campagne d'essais (réalisée dans les mêmes conditions que pour les composites). En ce qui concerne les composites A et B, les paramètres utilisés sont ceux qui ont été optimisés précédemment. De nouveau, des conditions de saut de teneur en eau et de continuité du flux de masse d'eau sont appliquées aux interfaces entre les quatre couches (composite A – résine A – résine B – composite B) en adaptant les variables du problème multi-matériaux discrétisé en fonction des paramètres diffusifs de chaque matériau et des pas d'espaces utilisés pour chaque couche.

Un fitting satisfaisant a été obtenu à l'issue de cette seconde optimisation du modèle, en considérant une interphase de  $40 \mu\text{m}$  (cf. (Fig. 6)). Il est notable que la nouvelle cinétique bi-matériaux modélisée, appelée  $C_{opt2}^{AB}$ , permette de mieux estimer la seconde phase de diffusion. Ainsi, on arrive à reproduire une cinétique de diffusion très proche de celles obtenues expérimentalement.

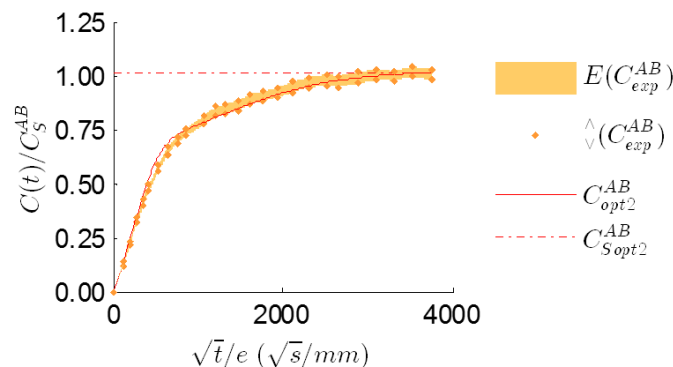


Fig. 6. Optimisation du modèle (ajout d'une interphase) : résultats expérimentaux et simulés pour le bi-matériaux AB.

## 5. Conclusions et perspectives

L'objectif de ce travail était d'étudier la diffusion d'eau dans un assemblage bi-matériaux composites et notamment de reproduire la cinétique de ce dernier à partir de celles obtenues pour les matériaux composites seuls. Pour ce faire, une campagne expérimentale a été mise en place et a permis d'obtenir les cinétiques de diffusion d'un bi-matériaux et des matériaux composites qui le constituent. Toutes les cinétiques obtenues ont présenté un comportement diffusif non-Fickien. Les paramètres diffusifs des composites seuls ont ainsi été identifiés avec le modèle dit « Dual-Fick ». Des observations MEB ont permis de définir les épaisseurs de couches des différents composites au sein de l'assemblage bi-matériaux. Ensuite, un modèle numérique a été développé suivant la méthode des différences finies, dans le but de simuler la diffusion d'eau dans un bi-matériaux à partir des paramètres diffusifs des mono-matériaux constituants et des épaisseurs de couches. Tout d'abord, des conditions d'interface parfaite avec saut de teneur en eau et de continuité du flux massique d'eau ont été appliquées. Une première simulation via cette approche numérique, prenant en compte les paramètres mono-matériaux identifiés moyens n'a pas permis de reproduire la cinétique du multi-matériaux. En effet, la cinétique simulée sous-estimait les résultats expérimentaux. Par conséquent, deux optimisations ont été effectuées. Une optimisation des paramètres d'entrée (prenant en compte la variabilité des résultats obtenus pour les mono-matériaux) a ainsi permis de s'approcher davantage des résultats expérimentaux. Puis, une optimisation du modèle avec l'intégration d'une interphase composée des résines des matériaux composites a permis d'obtenir d'encore meilleurs résultats. Une des prochaines étapes de ce travail est de simuler les contraintes internes générées par la diffusion d'eau dans un assemblage multi-matériaux, via le logiciel éléments finis VPS d'ESI [12].

## Remerciements

Les auteurs remercient Airbus Helicopters et le Plan d'Investissement d'Avenir à travers le CORAC et le projet Usine Aéronautique du Futur, MAESTRIA, Convention IA-2016-09-04, pour leur soutien à ce travail.

## Références

- [1] J. Verdu, « Action de l'eau sur les plastiques », Techniques de l'ingénieur, AM3165, 2000.
- [2] A. Fick. « Ueber Diffusion », Annalen der Physik, Vol. 170, n° 1, pp. 59–86, 1855.
- [3] H. Carter, K. Kibler., « Langmuir-type model for anomalous moisture diffusion in composite resins », Journal of Composite Materials, Vol. 12, n° 2, pp. 118–131, 1978.
- [4] W. K. Loh, A. D. Crocombe, M. M. Abdel Wahab, I. A. Ashcroft, « Modelling anomalous moisture uptake, swelling and thermal characteristics of a rubber toughened epoxy adhesive », International Journal of Adhesion & Adhesives, Vol. 25, n° 1, pp. 1–12, 2005.
- [5] M. D. Placette, X. Fan, J.-H. Zhao, D. Edwards, « Dual stage modeling of moisture absorption and desorption in epoxy mold compounds », Microelectronics Reliability, Vol. 52, n° 7, pp. 1401–1408, 2012
- [6] B. De Parseau Du Plessix, F. Jacquemin, P. Lefebure, S. Le Corre, « Characterization and modeling of the polymerization-dependent moisture absorption behavior of an epoxy-carbon fiber-reinforced composite material », Journal of Composite Materials, Vol. 50, n° 18, pp. 2495–2505, 2016.
- [7] J. Cocaud, A. Céline, S. Fréour, F. Jacquemin, « What about the relevance of the diffusion parameters identified in the case of incomplete Fickian and non-Fickian kinetics? », Journal of Composite Materials, Vol. 53, n° 11, pp. 1555–1565, 2019.
- [8] J. M. Augl, A. E. Berger, « Moisture Diffusion Analysis in Multilayer Composite Materials by Finite Difference Analysis », Technical Report NSWCCARDIV-TR-95/013, Naval Surface Warfare Center, Carderock Division, 1996.
- [9] R. I. Hickson, S. I. Barry, G. N. Mercer, H. S. Sidhu, « Finite difference schemes for multilayer diffusion », Mathematical and Computer Modelling, Vol. 54, n° 1–2, pp. 210–220, 2011.
- [10] D. Liu, J. Wang, R. Liu, S. B. Park, « An examination on the direct concentration approach to simulating moisture diffusion in a multi-material system », Microelectronics Reliability, Vol. 60, pp. 109–115, 2016.
- [11] J. Crank, « The Mathematics of Diffusion », Oxford University Press, 2<sup>nd</sup> edition, 1975.
- [12] ESI VPS Virtual Performance Solution, <https://www.esi-group.com/software-solutions/virtual-performance/virtual-performance-solution/benefits/lightweight-design>