

# Transport de l'eau dans une feuille de caoutchouc naturel pendant la période de séchage à vitesse décroissante

R. AURIA<sup>†</sup> et J. C. BENET<sup>‡</sup>

<sup>†</sup>ORSTOM, Institut Français de Recherche Scientifique pour le Développement en Coopération, 2051 Av. du Val de Montferrand, B.P. 5045, 34032 Montpellier, France

<sup>‡</sup>Laboratoire de Génie Civil, Université des Sciences et Techniques du Languedoc, UA, CNRS, 859, Place Eugène Bataillon, 34060 Montpellier Cedex, France

(Reçu le 13 octobre 1988 et sous forme finale le 16 octobre 1989)

**Résumé**—On aborde l'étude des transferts internes d'eau dans une feuille de caoutchouc naturel lors de la période de séchage à vitesse décroissante. Il est montré que le caoutchouc naturel reste un milieu diphasique; une relation décrivant la contraction de la structure lors du séchage est proposée. L'analyse expérimentale de l'évolution des profils de teneur en eau dans la feuille permet de valider une loi de transport de l'eau utilisant le gradient de teneur en eau comme force thermodynamique de transport. Le coefficient de transport qui intervient dans cette loi est fortement dépendant de la teneur en eau.

## 1. INTRODUCTION

LE CAOUTCHOUC naturel reste de nos jours un matériau utilisé dans la fabrication de nombreux produits manufacturés de grande consommation. Certaines de ses propriétés (élasticité, résistance à l'usure, faible échauffement, ...) [1], encore inégalées par le caoutchouc synthétique, en font un produit irremplaçable dans certains secteurs de l'industrie tels que: l'aéronautique et l'automobile (pneumatique d'avions et de poids lourds), la mécanique (courroies, joints d'étanchéité) la para-chirurgie. En 1985, la production mondiale était de 4,2 millions de tonnes; la demande estimée pour l'an 2000 est de 6 millions de tonnes. La quasi totalité de la production est assurée par les pays d'Extrême-Orient (95%), alors que moins de 5% est produit par l'Afrique de l'ouest et 0,12% par les pays d'Amérique du Sud.

Avant l'utilisation industrielle du caoutchouc naturel sous ces différentes formes, de nombreuses opérations de transformation du produit par des procédés chimiques, mécaniques et thermiques sont nécessaires. L'ensemble de ces traitements influence à des degrés divers la qualité du produit fini. L'usinage après récolte fait partie de ces traitements intermédiaires, coûteux en énergie; il englobe toute une série d'opérations: coagulation, laminage ou granulation et séchage.

Parmi ces opérations, le séchage consomme plus de 70% de l'énergie totale, soit une consommation annuelle pour 1985 de 600 000 TEP. Cette importante dépense d'énergie s'explique d'une part par les conditions sévères imposées—la teneur en eau finale du produit après séchage ne doit pas dépasser en moyenne 0,7%—et d'autre part, par la structure particulière de caoutchouc—sa faible perméabilité n'autorise qu'un processus lent de diffusion de l'humidité

de l'intérieur du matériau vers sa surface. L'existence dans un lot de caoutchouc de parties imparfaitement séchées (Virgins) rend celui-ci inutilisable par les manufacturiers; le rejet du lot ou son retraitement contribue aux pertes de matière et d'énergie liées à une mauvaise conduite du séchage. Ces considérations justifient les recherches entreprises pour une meilleure maîtrise des procédés de séchage.

Le séchage des feuilles de caoutchouc naturel qui fait l'objet de cette étude a donné lieu à une littérature peu abondante. Les premiers travaux [2] ont permis de situer les différentes périodes de séchage: une période de séchage à vitesse constante, pour une teneur en eau moyenne  $w$  supérieure à  $w_{c1}$ , appelée premier point critique; une période de séchage à vitesse décroissante pour une valeur de  $w$  inférieure à  $w_{c1}$ . Cette période est elle même constituée de deux phases: la première dite "intermédiaire" ou encore "à surface non saturée", la seconde dite "diffusionnelle". Le passage entre ces deux phases est caractérisé par un deuxième point critique correspondant à une teneur en eau moyenne  $w_{c2}$ .

Durant la première période de séchage, on admet que les mécanismes internes de transport de l'humidité à l'intérieur du produit sont suffisamment rapides pour maintenir la surface de la feuille saturée en sérum [2, 3]. La vitesse de séchage dépend alors des paramètres aérothermiques de l'air asséchant. Les apports de chaleur au film d'eau situé en surface équilibrent l'énergie nécessaire à la vaporisation de l'eau. Le séchage est isenthalpique et la température de la feuille est égale à la température du thermomètre humide [3, 4]; les transferts à l'interface, à travers la couche limite, gouvernent le processus de séchage. A notre connaissance, peu de résultats concernent les mécanismes internes de transport de l'eau durant

## NOMENCLATURE

$D, D_1$	coefficients de transport isotherme de l'eau dans une feuille de caoutchouc naturel	$\bar{w}_{c1}$	teneur en eau moyenne au premier point critique de séchage
$DRC$	concentration en masse de caoutchouc dans le latex	$\bar{w}_{c2}$	teneur en eau moyenne au second point critique de séchage
$M_e$	masse molaire de l'eau	$x$	coordonnée suivant un axe perpendiculaire aux faces de la feuille.
$MR$	taux de laminage	Symboles grecs	
$m$	masse totale de la feuille	$\mu_e$	potentiel chimique de l'eau
$m_e$	masse de l'eau contenue dans la feuille	$\mu_{ve}$	potentiel chimique de la vapeur d'eau en équilibre thermodynamique avec l'eau du caoutchouc
$m_s$	masse anhydre de la feuille	$\rho_e$	masse volumique apparente de l'eau
$p_v$	pression partielle de la vapeur d'eau	$\rho_s$	masse volumique apparente de la phase solide
$p_{vs}$	pression de vapeur saturante	$\rho_e^*$	masse volumique réelle de l'eau
$R$	constante des gaz parfaits	$\rho_s^*$	masse volumique réelle du caoutchouc.
$t$	temps		
$T$	température		
$V_e$	vitesse phénoménologique de l'eau liquide		
$w$	teneur en eau		
$\bar{w}$	teneur en eau moyenne		

cette période de séchage. Parmi ces mécanismes de transport, on peut citer l'existence d'un phénomène de synérèse, décrit par la plupart des auteurs comme une exsudation du sérum contenu dans la feuille de caoutchouc sous l'action d'une contraction de la structure. Ce mécanisme de transport jouerait un rôle important pour maintenir saturée la surface de la feuille [3].

A la première période de séchage, succède la phase de séchage dite "intermédiaire" marquée par une décroissance rapide de la vitesse de séchage. Cette décroissance est liée à la diminution de la fraction de la surface de la feuille entièrement saturée. L'ensemble des auteurs [2-5] s'accordent pour situer la fin de cette phase de séchage à une teneur en eau critique moyenne  $\bar{w}_{c2}$  de 10%.

En dessous de cette teneur en eau la vitesse de séchage diminue nettement. Cette nouvelle phase de séchage dite "diffusionnelle" représente plus de 90% du temps total de séchage. Les premières contributions concernant cette phase de séchage ont permis d'établir expérimentalement une relation de proportionnalité entre le temps de séchage et le carré de l'épaisseur des feuilles [5]. Cette relation de proportionnalité qui correspond à une approche théorique de type Fick [2] à coefficient de diffusion constant, laisse supposer que les transferts internes règlent les mécanismes de séchage et que ces transferts sont de types diffusifs. Cependant, certains auteurs [4,6] constatent, que le coefficient de diffusion varie avec la teneur en eau.

Toutes les études citées précédemment abordent le problème du séchage du caoutchouc naturel par des approches globales basées sur l'analyse des cinétiques de séchage. Les formules empiriques proposées ont des domaines de validité restreints et la précision des

résultats est limitée. Ces approches globales masquent les contributions des différents mécanismes internes de transport de l'humidité intervenant lors du séchage d'une feuille de caoutchouc. Elles ne rendent pas compte du "croûtage" qui apparaît à la surface de la feuille dès le début de la phase diffusionnelle de séchage; ce phénomène a une importance prépondérante sur le déroulement de la cinétique de séchage.

L'étude proposée a pour but d'étudier le séchage des feuilles de caoutchouc naturel pendant la période à vitesse décroissante à partir d'une analyse des mécanismes internes de transport de l'humidité; elle apporte des contributions sur les points suivants:

- (1) Isotherme de désorption et étude de la contraction de la structure.
- (2) Elaboration d'un modèle mathématique local de transport de l'eau pendant la période de séchage à vitesse décroissante.
- (3) Etude expérimentale du mécanisme interne de transport de l'eau durant la période de séchage à vitesse décroissante, mesure du coefficient de transport de l'eau et étude de sa variation en fonction de la teneur en eau.

## 2. ISOTHERME DE DESORPTION— CONTRACTION DE LA STRUCTURE

### 2.1. Préparation du latex

Le latex de caoutchouc se présente sous la forme d'une suspension de globules de caoutchouc dans un sérum contenant des éléments organiques et minéraux. La teneur en matières solides du latex est d'environ 30 à 35% dont 90% est constitué par les particules de caoutchouc. Le reste est constitué par les éléments non caoutchouc (protéines, ions, ...) qui se

trouvent soit en dispersion ou en solution dans le sérum, soit liés aux globules de caoutchouc [1]. Le latex utilisé pour les expériences provient de Côte d'Ivoire, la concentration en masse de caoutchouc dans le latex définie par son *DRC* (dry rubber content) est égale à 37%. Pour éviter toute coagulation spontanée des particules de caoutchouc, le latex est stabilisé à l'aide d'une solution d'ammoniaque diluée ( $9 \text{ g l}^{-1}$  de latex). Après dilution à un *DRC* de référence de 15%, on réalise une coagulation des particules de caoutchouc par addition d'acide acétique. Cette coagulation qui s'effectue à un pH de 4,8, conduit à la séparation des deux phases du latex : le coagulum et le sérum. Après une période de maturation de 20 heures un laminage permet d'extraire mécaniquement une partie du sérum contenu dans le coagulum. L'intensité du laminage, est caractérisée par le paramètre *MR* (machining ratio) défini comme le rapport entre l'espacement des rouleaux du laminoir et l'épaisseur moyenne du coagulum à l'entrée. Pour l'ensemble des expériences *MR* est pris égal à 0,15. Pour le latex utilisé et les conditions de préparation adoptées, le premier point critique qui marque le début de la période à vitesse décroissante correspond à une teneur en eau  $\bar{w}_{c1}$  de l'ordre de 20% [7].

## 2.2. Isotherme de désorption

On se propose de déterminer la relation entre la teneur en eau du caoutchouc et l'humidité relative de l'air ambiant en équilibre. Le dispositif expérimental se compose de plusieurs récipients dans lesquels l'humidité relative de l'air est maintenue constante par des solutions de sels saturées. Ces récipients sont placés dans un bain régulé en température. Les expériences d'équilibre ont été réalisées à 60°C pour quatre valeurs de l'humidité relative (30, 43, 76 et 82%).

Les feuilles de caoutchouc de dimensions  $57 \times 38 \times 2,2$  mm sont disposées dans les récipients au-dessus des solutions de sels. Au cours du temps, on procède à la mesure de la masse  $m$  de la feuille. On considère que la feuille a atteint l'équilibre hygroscopique dès lors

que deux pesées consécutives donnent des résultats identiques à 0,2 mg près. La feuille est ensuite placée dans un dessiccateur dans lequel elle atteint sa masse anhydre  $m_s$ . La teneur en eau d'équilibre de la feuille est définie par :

$$\bar{w} = \frac{m - m_s}{m_s} \quad (1)$$

Les points d'équilibre sont représentés Fig. 1 parmi les résultats obtenus par différents auteurs. On peut constater sur cette figure une bonne cohérence de l'ensemble des résultats expérimentaux présentés. La Fig. 1 amène les commentaires suivants :

— l'isotherme de désorption est peu sensible à l'origine du latex et à la température,

— le caoutchouc naturel est un matériau peu hygroscopique, la déviation de l'activité de l'eau par rapport à celle de l'eau libre ne se fait sentir qu'au-dessous d'une teneur en eau de l'ordre de 2%.

## 2.3. Contraction de la structure

Les expériences réalisées ont pour but d'étudier la contraction volumique d'une feuille de caoutchouc au cours du séchage et d'établir une relation entre la masse volumique apparente de la phase solide du caoutchouc naturel et la teneur en eau.

L'enceinte de séchage utilisée pour l'étude de la contraction du caoutchouc naturel est constituée d'une série de tubes de verre reliés à leurs bases par un tube de section plus importante (Fig. 2). L'humidité relative de l'air dans l'enceinte de séchage est maintenue constante à l'aide d'une solution d'acide sulfurique diluée. L'ensemble est placé dans un bain régulé en température par un thermostat à immersion. Les expériences ont été réalisées à 49°C pour une humidité relative de l'air de 50%. Des feuilles de caoutchouc naturel de différentes épaisseurs comprises entre 2 et 8 mm sont préparées. Des échantillons de diamètre moyen 24 mm sont prélevés dans ces différentes feuilles à l'aide d'un emporte-pièce rotatif.

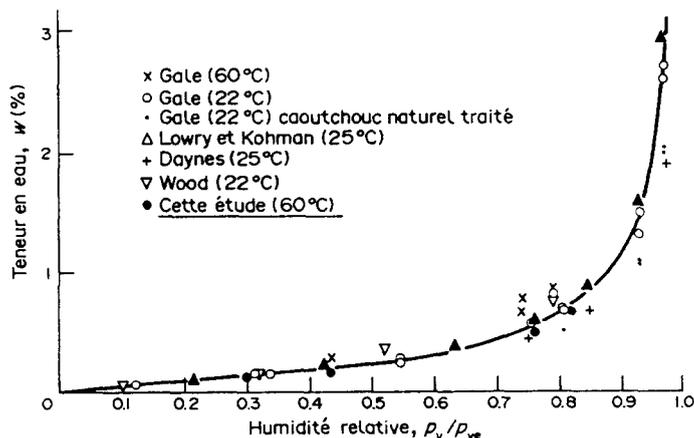


FIG. 1. Isotherme de désorption du caoutchouc naturel.

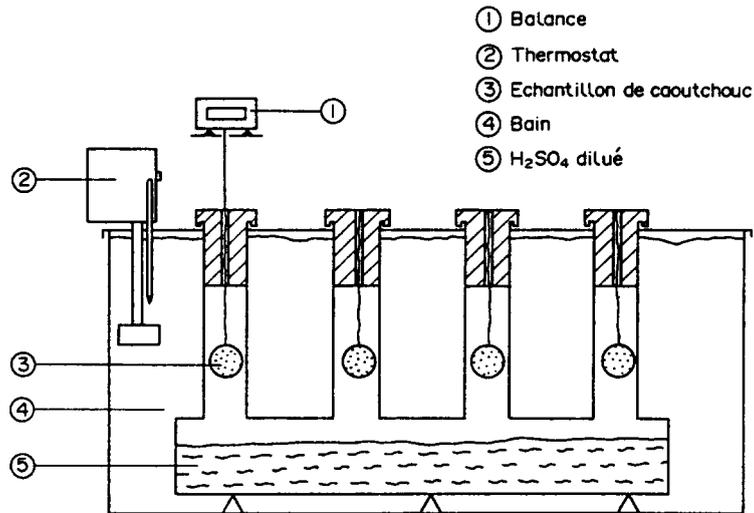


FIG. 2. Schéma du dispositif expérimental.

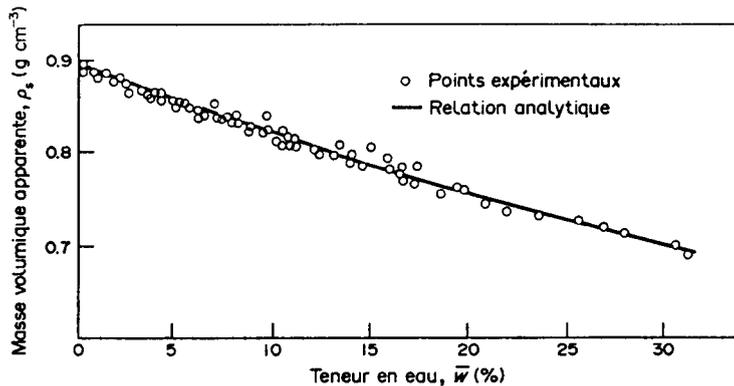


FIG. 3. Variation de la masse volumique apparente du caoutchouc naturel en fonction de la teneur en eau.

puis placés dans les tubes. A différents instants du séchage, les échantillons sont pesés à l'aide d'une balance de précision (0,1 mg). Simultanément, le volume apparent de l'échantillon  $V$  est déterminé par la mesure du poids du volume de mercure déplacé. En fin d'expérience, la masse anhydre  $m_s$  est déterminée après dessiccation complète des échantillons. Ces mesures donnent accès à la teneur en eau moyenne  $\bar{w}$  et à la masse volumique apparente de la phase solide du caoutchouc naturel  $\rho_s$  :

$$\rho_s = \frac{m_s}{V}$$

Les points de la Fig. 3 représentent la variation de la masse volumique apparente en fonction de la teneur en eau moyenne de l'échantillon.

Pour interpréter analytiquement la relation expérimentale mise en évidence Fig. 3, supposons que le caoutchouc présente une structure diphasique. Sous

cette condition, la masse volumique apparente de la phase solide  $\rho_s$  du caoutchouc naturel s'exprime en fonction de la teneur en eau moyenne par [7] :

$$\rho_s = \frac{\rho_s^* \cdot \rho_e^*}{\rho_e^* + \rho_s^* \cdot \bar{w}} \quad (2)$$

avec  $\rho_e^*$  : masse volumique réelle de l'eau ( $0,99 \text{ g cm}^{-3}$ ) ;  $\rho_s^*$  : masse volumique réelle de la phase solide du caoutchouc naturel.

La microscopie électronique [7] montre qu'à l'état déshydraté le caoutchouc naturel est compact, la masse volumique réelle de la phase solide du caoutchouc naturel  $\rho_s^*$  est supposée indépendante de la teneur en eau et égale à la valeur de  $\rho_s$  pour une teneur en eau nulle ( $\rho_s^* = 0,893 \text{ g cm}^{-3}$ ). La relation analytique (2) représentée Fig. 3 en trait continu est une bonne approximation de l'ensemble des points expérimentaux. Cette relation est satisfaisante pour décrire la contraction de la structure au cours du séchage. La

bonne concordance entre l'expérience et la théorie suggère que l'hypothèse d'une structure diphasique (caoutchouc + sérum) peut être retenue.

### 3. MODELE DE TRANSPORT ISOTHERME DE L'EAU DANS UNE FEUILLE DE CAOUTCHOUC NATUREL PENDANT LA PERIODE DE SECHAGE A VITESSE DECROISSANTE

L'hypothèse d'une structure diphasique est adoptée et on assimile la phase liquide à de l'eau pure. On admet de plus, que pendant la période à vitesse décroissante, la température de la feuille est uniforme et constante; cette hypothèse fera l'objet d'une vérification expérimentale. La teneur en eau  $w$  est choisie comme variable d'état.

#### 3.1. Equation de bilan de masse de l'eau

Le bilan de masse de la phase liquide s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_s \cdot w) = -\text{div} (\rho_e \cdot \mathbf{V}_e) \quad (3)$$

avec  $\rho_e$ : masse volumique apparente de la phase liquide;  $w = \rho_e / \rho_s$ : teneur en eau;  $V_e$ : vitesse phénoménologique de l'eau liquide.

#### 3.2. Relation phénoménologique de transport

L'application des méthodes de la thermodynamique des processus irréversibles linéaires conduit, en négligeant la pesanteur, à adopter une relation phénoménologique de transport de l'eau de la forme [7]:

$$\rho_e \cdot \mathbf{V}_e = -D \cdot \text{grad } \mu_e \quad (4)$$

$\mu_e$  est le potentiel chimique massique de l'eau liquide.  $D$  est le coefficient de transport isotherme de l'eau dans le caoutchouc naturel.

#### 3.3. Equations d'état

Pour exploiter les relations (3) et (4) il est nécessaire d'exprimer par deux équations d'état les variables  $\mu_e$  et  $\rho_s$  en fonction de la variable d'état  $w$ . Dans un processus isotherme, le potentiel chimique de l'eau  $\mu_e$  est égal au potentiel chimique de la vapeur d'eau en équilibre  $\mu_{ve}$ :

$$\mu_e = \mu_{ve} = \frac{RT}{M_e} \ln \frac{p_v}{p_{vs}} \quad (5)$$

avec  $R$ : constante des gaz parfaits;  $T$ : température de l'air;  $M_e$ : masse molaire de l'eau;  $p_v$ : pression partielle de la vapeur d'eau à l'équilibre;  $p_{vs}$ : pression de vapeur saturante à la température  $T$ .

L'isotherme de désorption fournit une relation entre  $p_v$  et  $w$ :

$$p_v = h(w). \quad (6)$$

Bien que les techniques de mesures actuelles ne permettent pas pour le caoutchouc naturel de déterminer avec précision la pression partielle d'équilibre  $p_v$  au-

dessus d'une teneur en eau de l'ordre de 2%, la relation (6) existe quelle que soit la teneur en eau.

En combinant (5) et (6), il vient :

$$\mu_e = \frac{RT}{M_e} \ln (h(w)) = f(w). \quad (7)$$

La relation entre  $\rho_s$  et  $w$  qui rend compte de la contraction de la structure est donnée par (2). Dans l'intervalle de teneur en eau étudié ( $w < 20\%$ ), la relation (2) peut-être approximée par une relation linéaire de la forme :

$$\rho_s = \rho_s^* - \frac{\rho_s^*}{\rho_e^*} w. \quad (8)$$

#### 3.4. Modèle de transport isotherme de l'eau

Compte tenu de (4) et (7), la relation phénoménologique de transport de l'eau s'écrit :

$$\rho_e V_e = -D \cdot \text{grad } f(w) = -D_1 \cdot \text{grad } w. \quad (9)$$

Avec :

$$D_1 = D \cdot \frac{\partial f}{\partial w}. \quad (10)$$

Le bilan de masse (3) devient :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_s \cdot w) = \text{div} (D_1 \cdot \text{grad } w). \quad (11)$$

La relation (11), complétée par (8) constitue un modèle de transport isotherme de l'eau dans le caoutchouc naturel.

## 4. ETUDE EXPERIMENTALE DU MECANISME DE TRANSPORT DE L'EAU PENDANT LA PERIODE DIFFUSIONNELLE DE SECHAGE D'UNE FEUILLE DE CAOUTCHOUC NATUREL—MESURE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION

A partir du modèle phénoménologique de transport de l'eau exposé précédemment une étude expérimentale a été développée afin d'analyser les mécanismes internes de transport de l'eau durant la période de séchage à vitesse décroissante. Cette étude a pour but :

- de valider la relation phénoménologique de transport de l'eau (9) adoptée;
- d'étudier la variation du coefficient de transport isotherme de l'eau  $D_1$  en fonction de la teneur en eau.

#### 4.1. Principe des expériences—dispositif expérimental

Le principe des expériences consiste à placer des échantillons d'une feuille de caoutchouc dans une enceinte de séchage régulée en humidité et température et de suivre au cours du temps l'évolution des profils de teneur en eau et de température dans ces échantillons dans la direction des transferts, c'est à dire perpendiculairement aux faces de la feuille.

L'enceinte de séchage utilisée pour cette expérience est identique à celle décrite précédemment (Fig. 2).

Une solution d'acide sulfurique diluée maintient l'atmosphère asséchante à une humidité relative de 50%. La température est réglée à 60°C.

Après l'opération de laminage, la feuille de caoutchouc est soumise à un faible pressage afin d'uniformiser son épaisseur à 8 mm. A l'aide d'une emporte pièce rotatif des échantillons de 25 mm de diamètre sont prélevés dans la feuille et placés dans les différents tubes de l'enceinte de séchage. Une pesée en continu est réalisée sur un des échantillons. Des thermocouples disposés dans un autre échantillon permettent de suivre l'évolution des profils de température. La température de l'air dans les tubes est mesurée à l'aide de thermocouples placés à proximité de l'échantillon. Ces températures sont mesurées avec une incertitude de  $\pm 1^\circ\text{C}$ .

Les autres échantillons sont destinés à la détermination des profils de teneur en eau par une méthode de découpe en lamelles de fine épaisseur perpendiculaires à la direction des transferts. A différents instants du séchage, un échantillon est extrait de l'enceinte de séchage à cet effet. Pour minimiser les effets de bord, un échantillon cylindrique de 14 mm de diamètre est prélevé au centre de l'échantillon de 25 mm de diamètre. Ce nouvel échantillon est pesé puis inclus dans un moule en silicone. Pour figer les profils de teneur en eau et faciliter la découpe, l'ensemble est congelé à l'azote liquide. L'échantillon est découpé en lamelles de 0,6 mm d'épaisseur à l'aide d'une scie circulaire. Le réglage de l'épaisseur des lamelles est obtenu par déplacement de la platine sur laquelle est fixé l'échantillon au moyen d'une vis micrométrique. Au cours de l'opération de découpe, l'ensemble moule + échantillon est maintenu congelé par des éléments à effet Peltier. La teneur en eau de chaque lamelle est mesurée par pesée à l'état hydraté et l'état anhydre. Dans l'intervalle de teneur en eau étudié ( $w < 20\%$ ), il a été montré d'une part, que les techniques utilisées (congélation, découpe) n'entraînent

pas de perte d'eau et de perturbation des profils et, d'autre part, que les profils déterminés sur des échantillons différents sont représentatifs de l'évolution d'un échantillon unique [7].

#### 4.2. Résultats expérimentaux

On présente Fig. 4 l'évolution du profil de teneur en eau obtenu sur la demi épaisseur de l'échantillon. Ces profils ont été établis après vérification de la symétrie des points expérimentaux par rapport au plan médian de la feuille.

L'ensemble des profils met en évidence dans certaines régions de la feuille de forts gradients de teneur en eau pouvant atteindre  $100\text{ m}^{-1}$ . On peut constater qu'après 42 heures de séchage (profil 3), la teneur en eau d'équilibre est atteinte en surface. Cette valeur ( $w = 0,5\%$ ) correspond à la teneur en eau moyenne d'équilibre atteinte par l'échantillon en fin de séchage (profil 9). Ce résultat est en accord avec la valeur de la teneur en eau obtenue à partir des isothermes de désorption à 60°C (Fig. 1). Il est à noter que la mise en équilibre du produit en surface est caractérisée par l'apparition d'une fine couche de couleur brunâtre marquant l'apparition du phénomène de "croûtage". Près de la surface, on observe l'apparition d'un point d'inflexion sur les profils de teneur en eau 6-8. Une zone de gradient de teneur eau sensiblement nul (zone de croûtage) progresse au cours du séchage vers le coeur de la feuille (profils 7 et 8).

L'évolution du profil de température suivant l'épaisseur est représentée Fig. 5. La distribution des températures dans l'échantillon est pratiquement uniforme, la valeur moyenne est de 59,5°C pendant toute l'expérience. Le thermocouple placé dans l'atmosphère séchante à proximité de l'échantillon montre que la différence entre la température de l'air et la température moyenne de l'échantillon n'excède pas 1°C. On peut conclure qu'il n'existe aucun déséquilibre thermique notable entre l'échantillon et

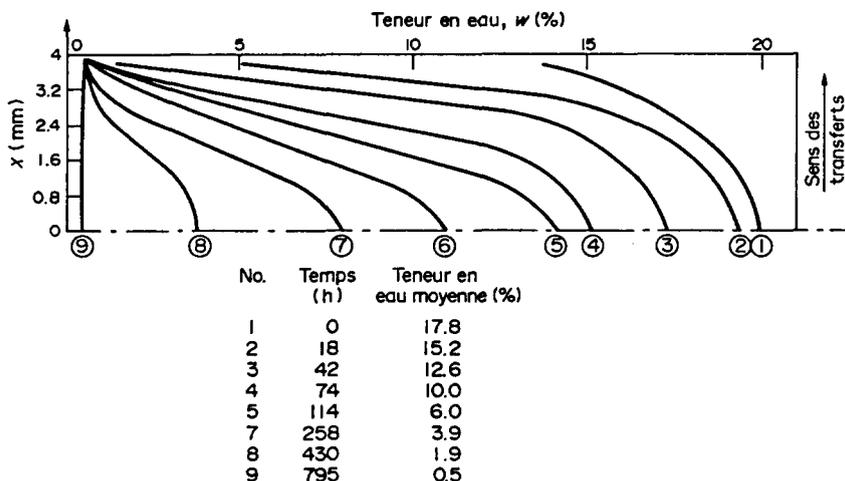


FIG. 4. Evolution du profil de teneur en eau.

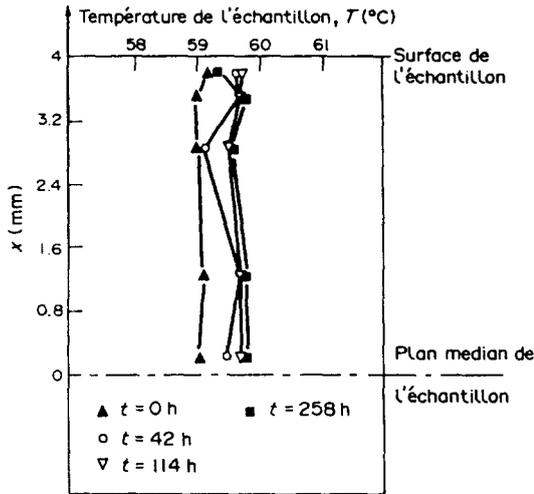


FIG. 5. Evolution du profil de temperature.

l'atmosphère. Les mesures de température justifient l'hypothèse d'un séchage isotherme adopté dans cette étude.

4.3. Validation de la relation phénoménologique de transport de l'eau

Dans les expériences effectuées, les transferts peuvent être considérés comme unidirectionnels suivant l'épaisseur de la feuille (direction  $x$  de la Fig. 4). Suivant cette direction, la relation (9) s'écrit :

$$\rho_e V_e = -D_1 \frac{\partial}{\partial x} w. \tag{12}$$

Pour vérifier cette relation, il faut d'une part déterminer la force thermodynamique  $\partial w / \partial x$  et d'autre part évaluer la densité de flux de transport de l'eau  $\rho_e V_e$ .

suivant la direction  $x$ . Le gradient de teneur en eau se déduit directement des profils de la Fig. 4. La détermination de la densité de flux  $\rho_e V_e$  est effectuée à partir du bilan de masse (3); en reportant la relation (8) dans la relation (3), il vient :

$$\frac{\partial}{\partial t} (xw^2 + w) = - \frac{1}{\rho_e^*} \frac{\partial}{\partial x} (\rho_e V_e) \tag{13}$$

avec

$$x = - \frac{\rho_e^*}{\rho_e^*}$$

En intégrant la relation (13) entre 0 et  $x$  à l'instant  $t$ , il vient :

$$\rho_e V_e(x, t) - \rho_e V_e(0, t) = - \rho_e^* \frac{\partial}{\partial t} \int_0^x (xw^2 + w) dx. \tag{14}$$

L'hypothèse de symétrie par rapport au plan médian de la feuille entraîne la nullité du flux pour  $x = 0$ :  $\rho_e V_e(0, t) = 0$ . En un point et à un instant donnés, la densité de flux se calcule par la relation :

$$\rho_e V_e(x, t) = - \frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_e^* \int_0^x (xw^2 + w) dx \right). \tag{15}$$

Les Figs. 6-8 représentent la variation de la densité de flux  $\rho_e V_e$  en fonction de la force thermodynamique  $\partial w / \partial x$  pour des valeurs de la teneur en eau comprises entre 5 et 15%. On constate que la linéarité entre flux et force est respectée. Ces représentations valident la relation (12), dans le domaine de teneur en eau exploré.

4.4. Variation du coefficient de transport isotherme de l'eau en fonction de la teneur en eau

A partir des profils de la Fig. 4, en utilisant la démarche proposée ci-dessus, il est possible de déter-

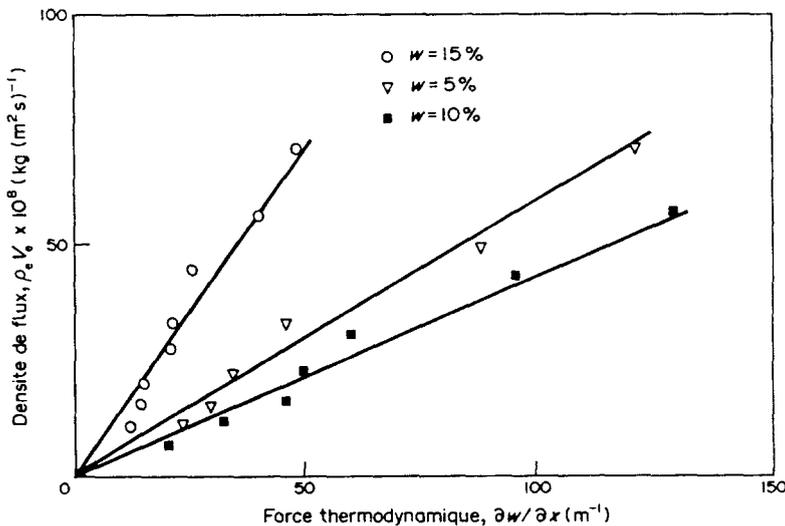


FIG. 6. Variation de la densité de flux d'eau en fonction du gradient de teneur en eau,  $w = 5, 10, 15\%$ .

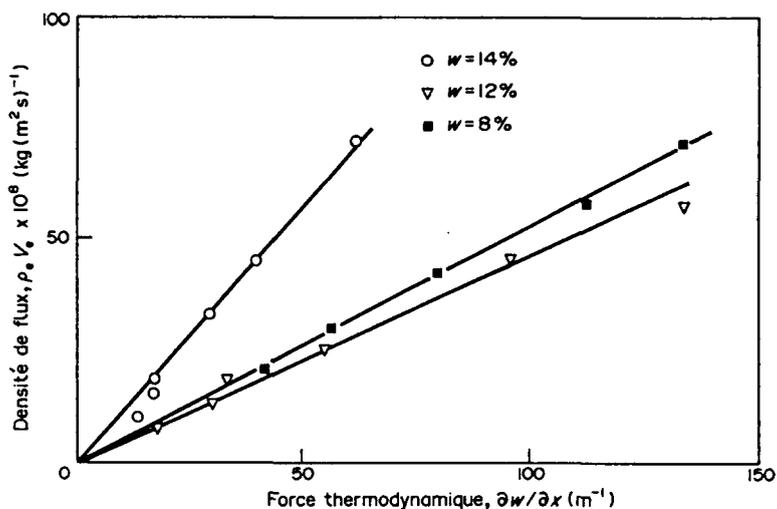


FIG. 7. Variation de la densité de flux d'eau en fonction du gradient de teneur en eau,  $w = 8, 12, 14\%$ .

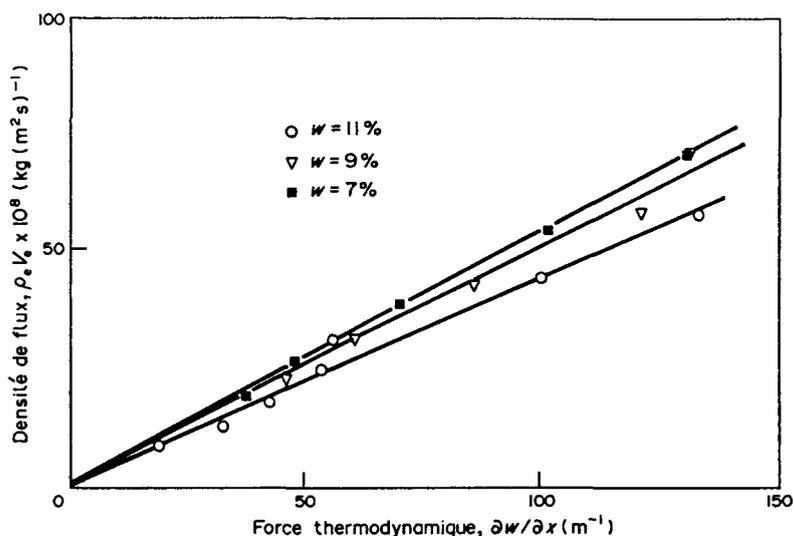


FIG. 8. Variation de la densité de flux d'eau en fonction du gradient de teneur en eau,  $w = 7, 11\%$ .

miner la valeur du coefficient de transport isotherme de l'eau  $D_1$  pour différentes teneurs en eau comprises dans l'intervalle  $2\% < w < 16\%$ . La Fig. 9 représente la variation du coefficient  $D_1$  en fonction de la teneur en eau  $w$ . On observe que ce coefficient dépend fortement de la teneur en eau. Il passe par un minimum pour une teneur en eau  $w$  de l'ordre de 10%. On notera que cette valeur correspond au second point critique de séchage qui marque le début de la phase diffusionnelle de séchage. L'allure de variation du coefficient  $D_1$  en fonction de la teneur en eau représentée Fig. 9 a été mise en évidence dans le cas de milieux triphasiques [8, 9]. La remontée du coefficient de diffusion est, dans ce cas, attribuée à la prépondérance des transferts en phase gazeuse aux faibles teneur en eau. Cette explication ne peut être retenue

ici compte tenu de la nature diphasique du caoutchouc naturel.

## 5. CONCLUSION

Cette étude apporte des informations sur la structure interne du caoutchouc naturel. Il a été montré que dans son état hydraté le caoutchouc naturel peut être considéré comme un milieu diphasique. Une relation décrivant la contraction volumique du produit a été établie.

Sur le plan théorique, l'adoption du gradient de potentiel chimique comme force thermodynamique de transport, conduit après simplification à décrire les phénomènes de transport par une loi de type Fick à coefficient variable. L'expression de ce coefficient fait

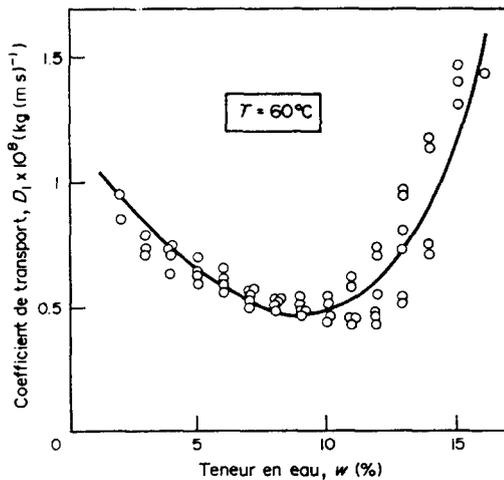


FIG. 9. Variation du coefficient de transport de l'eau en fonction de la teneur en eau.

intervenir la pente de l'isotherme de désorption. Le point de vue adopté dans cette étude qui tente d'établir une loi de transport à partir d'un gradient de potentiel chimique est à rapprocher de celui exposé en [10]. La difficulté d'exploiter cette voie dans notre cas réside dans l'impossibilité de déterminer de façon précise l'isotherme de désorption pour des teneurs en eau supérieures à 2%, le caoutchouc naturel étant un matériau peu hygroscopique.

Sur le plan expérimental, la détermination des profils de teneur en eau dans une feuille en cours de séchage a permis de mettre en évidence la progression de la zone de "croustage" vers le centre de la feuille. L'exploitation de ces profils justifie, dans l'intervalle de teneur en eau exploré, l'adoption d'une loi utilisant le gradient de teneur en eau comme potentiel de transport de masse. Il a été montré que le coefficient de transport passe par un minimum pour une teneur en eau correspondant au second point critique de

séchage. Cette allure de variation reste inexpliquée, des observations de la structure hydratée du caoutchouc naturel le long d'un processus de séchage, actuellement en cours devraient permettre d'expliquer la forme de la variation du coefficient de transport en fonction de la teneur en eau.

*Remerciements*—Ce travail a été réalisé avec le soutien financier de l'Institut Français de Recherche scientifique pour le développement en Coopération (ORSTOM), du Greco CNRS 72 "séchage et mécanismes de transport dans les milieux poreux non saturés", du Conseil régional Languedoc Roussillon dans le cadre du programme "séchage des produits agricoles et alimentaires", de l'Institut de Recherche sur la Caoutchouc (IRCA), de la Mission Technologie Agricole et Alimentaire du CIRAD.

## REFERENCES

1. P. Compagnon, *Le caoutchouc naturel*, Collection Techniques Agricoles et Productions Tropicales. Edition Maisonneuve et Larose, Paris (1986).
2. J. H. Piddlesden, The drying of rubber, *J. Rubb. Res. Inst. Malaya* 7, 117-146 (1937).
3. R. S. Gale, A survey of factors involved in an experimental study of sheet rubber, *J. Rubb. Res. Inst. Malaya* 16, 38-64 (1959).
4. S. Budiman, Water removal from natural rubber hydrogel, Thesis Master of Science, Ohio State University, pp. 1-96 (1973).
5. D. Van Harpen, Un exemple de la production scientifique et économique de caoutchouc de plantation fumé, *Revue générale du caoutchouc* 103-107 (1930).
6. R. S. Gale, Drying of sheet in the falling rate period, *Transactions* 38, 91-103 (1962).
7. R. Auria, Contribution à l'étude du caoutchouc naturel: structure interne et transfert d'humidité lors du séchage, Thèse de Doctorat, USTL Montpellier, p. 189 (1988).
8. G. L. Comstock, Moisture diffusion coefficients in wood as calculated from adsorption, desorption, and steady state data, *Forest Products J.* 97-103 (1963).
9. P. Crausse, G. Bacon et S. Bories, Etude fondamentale des transferts couples chaleur-masse en milieu poreux, *Int. J. Heat Mass Transfer* 24, 991-1004 (1984).
10. D. Gehrmann and W. Kast, Drying of gels, *Proc. First Int. Symp Drying*, Montreal, Canada (Edited by A. S. Mujumdar), pp. 239-246. Science Press, Princeton, New Jersey (1978).

## TRANSPORT OF WATER IN A SHEET OF NATURAL RUBBER DURING THE FALLING RATE PERIOD OF DRYING

**Abstract**—Water transfer in a sheet of natural rubber is studied during the falling rate period of drying. It is shown that natural rubber remains a diphasic medium during drying and an equation to describe voluminal contraction of the internal structure is proposed. Measurements of the evolution of the water content profile in the sheet made it possible to show that a transport law using the water content gradient as the thermodynamic force of transfer is sufficient to describe water transport during drying. The coefficient of water transport is strongly governed by the water content.

## WASSERTRANSPORT IN EINEM BLATT NATURKAUTSCHUK WÄHREND DER TROCKNUNGSPERIODE

**Zusammenfassung**—Es wird der Wassertransport in einem Blatt Naturkautschuk während der Trocknungsperiode untersucht. Dabei zeigt sich, daß der Naturkautschuk während des Trocknens ein zwei-phasiges Medium bleibt. Eine Gleichung wird vorgeschlagen, die die Volumenkontraktion der internen Struktur beschreibt. Die Messung der Entwicklung des Wassergehaltsprofils im Blatt ermöglicht es zu zeigen, daß ein Transportgesetz, welches den Gradienten des Wassergehaltes als thermodynamische Antriebskraft des Transports benutzt, zur Beschreibung des Wassertransports während der Trocknung ausreicht. Der Transportkoeffizient wird stark vom Wassergehalt bestimmt.

**ВЛАГОПЕРЕНОС В ПЛАСТИНЕ ИЗ НАТУРАЛЬНОГО КАУЧУКА В ПЕРИОДЕ СУШКИ  
С ПАДАЮЩЕЙ СКОРОСТЬЮ**

**Аннотация**—Исследуется влагоперенос в пластине из натурального каучука в периоде сушки с падающей скоростью. Показано, что в процессе сушки натуральный каучук остается двухфазной средой, и предложено уравнение для описания объемного сокращения внутренней структуры. Измерения эволюции профиля влагосодержания в пластине показали, что закон переноса, использующий градиент влагосодержания в качестве термодинамической силы, является достаточным для характеристики влагопереноса в процессе сушки. Коэффициент влагопереноса в значительной мере зависит от влагосодержания.