

--	--	--	--	--	--	--	--	--	--

Analyse des transferts de chaleur couplés à la saturation pendant l'imprégnation d'un renfort fibreux

Application aux procédés LCM

THÈSE DE DOCTORAT

Discipline : Energétique et Génie des Procédés
Spécialité : Thermique

*Présentée
et soutenue publiquement par*

Maxime VILLIÈRE

Le 28 novembre 2013, devant le jury ci-dessous

Président	Véronique Michaud	<i>Professeur</i>	EPFL Lausanne
Rapporteurs	Véronique Michaud	<i>Professeur</i>	EPFL Lausanne
	Jean-Christophe Batsale	<i>Professeur</i>	Trefle ENSAM Bordeaux
Examineurs	Joël Bréard	<i>Professeur</i>	Université du Havre
	Michel Glotin	<i>Ingénieur-Docteur</i>	Société Arkema, Paris
	Vincent Sobotka	<i>Maître de conférences</i>	Université de Nantes
	Nicolas Boyard	<i>Chargé de recherche CNRS</i>	Université de Nantes
	Didier Delaunay	<i>Directeur de recherche CNRS</i>	Université de Nantes

Directeurs de thèse : Didier Delaunay & Joël Bréard

REMERCIEMENTS

Rédiger la traditionnelle page des remerciements de la thèse est une tâche plus délicate qu'il n'y paraît, et ce pour deux raisons. D'abord parce que ces trois années m'ont permis de faire un constat amusant mais implacable : c'est de loin la page la plus lue du manuscrit, et pour beaucoup c'est la seule ! Ensuite parce que la difficulté réside dans le fait de n'oublier personne. Je remercie donc par avance les personnes dont le nom n'apparaîtra pas dans ces lignes, mais qui m'auront apporté leur soutien d'une manière ou d'une autre.

Mes premiers mots vont pour les personnes qui ont dirigé ces travaux, à commencer par Didier Delaunay, qui était de surcroît le porteur de projet inspiré du programme RTM-Plast, dans le cadre duquel cette thèse a été financée. Merci de m'avoir fait confiance à mon arrivée au LTN et d'avoir gardé un regard curieux et encourageant sur mon travail du début à la fin.

Un directeur de thèse c'est bien, deux c'est mieux ! J'associe en effet ces remerciements à Joël Bréard, qui fut mon second directeur de thèse au Havre. Même si nos entrevues n'ont pas été si régulières, elles n'ont jamais manqué d'amener des discussions très fructueuses qui m'ont toujours permis de progresser.

J'adresse une attention particulière à Véronique Michaud et Jean-Christophe Batsale, tous deux rapporteurs du manuscrit de thèse, qui m'ont fait l'honneur d'évaluer mes travaux, ainsi qu'à M. Michel Glotin, pour sa participation au jury de soutenance. J'ai été très sensible à l'intérêt que vous avez porté à mon travail.

Vincent, en tant que co-encadrant, tu as su très rapidement trouver un subtil dosage entre le travail et la bonne humeur, tout comme tu as pu me redonner un élan de motivation quand il le fallait. Lorsque l'on additionne tout ceci, cela donne d'excellentes conditions de travail, c'est pourquoi je te dis encore une fois merci ! PS : je t'avais bien dit qu'il fallait faire ces étalonnages !

Nicolas, même si sur le papier tu n'as pas été « officiellement » co-encadrant, je te remercie très sincèrement de ton soutien et de ton implication sans faille. En tant que membre de la « Dream team », tu as toujours su te rendre disponible, et c'est une des raisons pour lesquelles ce fut un réel plaisir de travailler avec toi.

Je n'oublie pas ce que l'on pourrait qualifier de « bras armé » du laboratoire, à savoir les services techniques, Jérôme, Christophe, et en particulier Nicolas l'orfèvre des manips, qui m'a accompagné avec brio pendant la campagne de mesures au Havre, et pour qui pourtant, au début : « c'est une usine à gaz ton truc, de toute façon ça marchera jamais ! ». Tu as révélé chez moi un goût certain pour l'expérimentation et la métrologie fine. Clin d'œil à Gwen qui s'est découvert durant ces trois années une soudaine passion pour l'autopsie des capteurs de pression.

Ma reconnaissance va également à Brigitte et Christine, de la cellule administrative, qui m'auront fait gagner un temps fou en me délestant de bon nombre de tâches administratives, sans oublier Nathalie, la « dame de l'informatique », qui adore intervenir lorsque je viens de supprimer tous mes mails par mégarde !

Je remercie aussi Cathy Castelain, directrice du laboratoire, qui a manifesté un engouement croissant pour les « petits déj' du thésard », qui je l'espère, s'inscriront dans la durée. J'ai également une pensée pour tous les chercheurs permanent du laboratoire que j'ai côtoyé avec plaisir pendant ces trois ans.

Que serait une thèse sans les compagnons du quotidien, ceux avec qui on partage les bons mots, les délires, les SE, les SR (moins souvent), les pauses thé, ou encore les apéros ? Un grand merci aux copains et collègues :

-Xavier Popovski et la Carambole, avec qui on a chaque jour repoussé les frontières de la connerie pour s'envoler dans l'astrale, que ce soit en dérivant sur la Loire en radeau, en vadrouille en stop à Germignac, perdus sur une île déserte à manger des goélands, ou encore tout simplement à refaire le monde lors de conversations improbables à la Perle...C'est en partie grâce à vous qu'une si bonne dynamique est née au sein des thésards ! Soyez certains que tous nos délires me resteront gravés en mémoire ! Courage à Denis pour la dernière ligne droite !

-Stéphane, l'homme qui chuchote à 120 décibels (seuil de douleur), qui, je dois l'avouer à regret, fut mon véritable mentor dans le domaine de la vectorisation des images (je t'avais promis d'écrire ça, j'espère que tu savoures !) Bon séjour à Toronto et la bise à Aimy de ma part.

-Sébastien dit « le gorille », qui m'a aidé à dompter le « thermo-conducto-saturomètre à vapeur » grâce à ses astuces de vieux singe. Merci au passage à Laurent Bizet pour son chaleureux accueil au Havre.

-Fabien l'asymptoteur, qui a effectué son stage master en mathématiques à mes côtés. Ma thèse doit beaucoup à tes excellents travaux sur l'homogénéisation ! Continue à z'haricoter comme tu sais si bien le faire !

-Yasir le Stakhanov pakistanais, avec qui j'ai partagé avec plaisir mon bureau pendant plus d'un an.

-Baptiste Poinpignon, mon dernier coloc' de bureau, qui malgré tous ses efforts n'aura pas fait de moi un grand invocateur. Je te souhaite bonne route pour la deuxième moitié de ta thèse !

-Mael le Hibou, et sa voix d'outre-tombe qui résonne tard le soir dans l'obscurité des troquets nantais, sans oublier Simon alias « Super Râleur », qui a fait de la contestation un art de vivre.

...et tous les autres, à savoir Akram, Alban le grillon, Alexandre GSM, Arab le bouffeur de saucisson (ou autre), Bakri, Basile (B41), Benjamin, Boubou, Boussad, D'Artagnan, Donia, Gaëlle GS, Géraldine, Jalal, Merouane, Pierre-Clément, P'tit Abdel, Samuel, Tala et Zineddine.

Anna, un merci qui vient du cœur pour ton soutien inconditionnel, pour m'avoir toujours redonné le sourire dans les moments les plus difficiles, et en particulier pendant la phase de rédaction, durant laquelle j'ai dû être insupportable !

Enfin, je voudrais exprimer mon affection à mes parents, qui m'ont toujours soutenu depuis le début de ces longues études. Ils sont restés attentifs et curieux malgré la distance, et ont su, sur mes recommandations, éviter autant que possible la question tant redoutée qui fait enrager n'importe quel thésard en proie au doute:

«- Alors, ta thèse... ça avance ?? »

« Les deux aérostats furent construits avec un taffetas croisé de Lyon enduit de gutta-percha. Cette substance gommo-résineuse jouit d'une imperméabilité absolue ; elle est entièrement inattaquable aux acides et aux gaz. Le taffetas fut juxtaposé en double au pôle supérieur du globe, où se fait presque tout l'effort. »

Jules Verne, visionnaire de l'essor des composites à matrice organique dans un extrait de « *Cinq semaines en ballon* », 1863.

SOMMAIRE

SOMMAIRE.....	v
LISTE DES FIGURES.....	ix
LISTE DES TABLEAUX.....	xiv
NOMENCLATURE.....	xv

CHAPITRE I – INTRODUCTION.....1

CHAPITRE II – LES PROCEDES LCM ET LEURS VERROUS SCIENTIFIQUES

I	INTRODUCTION AUX MATERIAUX COMPOSITES A MATRICE ORGANIQUE.....	6
II	LES PROCEDES LCM TRADITIONNELS	7
II.1	DESCRIPTION DU PROCEDE	7
II.2	RENFORTS UTILISES EN LCM	8
II.2.1	<i>Types de fibres.....</i>	<i>8</i>
II.2.2	<i>Architecture du renfort.....</i>	<i>9</i>
II.3	MATRICES UTILISEES EN LCM	10
II.4	OUTILLAGES.....	10
II.5	VARIANTES DU PROCEDE.....	11
II.6	POROSITES ET VIDES.....	12
III	MISE EN ŒUVRE DES COMPOSITES THERMOPLASTIQUES.	13
III.1	INTERET DES COMPOSITES THERMOPLASTIQUES.....	13
III.2	POSITION DU PROBLEME.....	14
III.3	LE RTM REACTIF	16
III.3.1	<i>Principe.....</i>	<i>16</i>
III.3.2	<i>La polymérisation par ouverture de chaîne.....</i>	<i>16</i>
IV	LE PHENOMENE DE DISPERSION THERMIQUE	18
IV.1	DESCRIPTION DU PHENOMENE.....	18
IV.2	MODELES THEORIQUES DE DISPERSION THERMIQUE.....	20
IV.2.1	<i>Dispersion longitudinale.....</i>	<i>20</i>
IV.2.2	<i>Dispersion transverse</i>	<i>20</i>
IV.3	TRAVAUX EXPERIMENTAUX	21
IV.3.1	<i>Simulation de Monte Carlo.....</i>	<i>21</i>
IV.3.2	<i>Mesure de la dispersion longitudinale en stationnaire.....</i>	<i>22</i>
IV.3.3	<i>Mesure de la dispersion en régime transitoire</i>	<i>23</i>
	Excitation périodique.....	23
	Echelon de température	24
	Source plane linéique.....	24
IV.3.4	<i>Mesure de la dispersion transverse</i>	<i>25</i>
V	LA MAITRISE DE LA THERMIQUE DES PROCEDES LCM	26
VI	OBJECTIFS DE L'ÉTUDE	29
VII	CONCLUSION PARTIELLE	30

CHAPITRE III - MESURE ET MODELISATION DU TENSEUR DE CONDUCTIVITE EFFECTIVE DU COMPOSITE

I	ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE	35
I.1	LA MESURE DES PROPRIÉTÉS THERMIQUES DES COMPOSITES	35
I.1.1	<i>Méthodes en régime stationnaire</i>	<i>36</i>
I.1.2	<i>Méthodes en régime transitoire.....</i>	<i>37</i>

I.1.2.a	Méthode flash.....	37
I.1.2.b	Méthode du fil chaud.....	38
I.1.2.c	Sondes à choc.....	39
I.1.2.d	Méthodes en régime périodique établi.....	39
I.1.2.e	Les méthodes de type source plane.....	41
	Sondes Hot Disk et C-Therm	41
	Méthode de la chauffeurette instrumentée	42
I.1.3	<i>Tableau récapitulatif des différentes méthodes</i>	42
I.1.4	<i>Mesure de la chaleur spécifique</i>	44
I.2	MODELISATION DES PROPRIETES THERMIQUES DES COMPOSITES.....	45
I.2.1	<i>Modélisation de la conductivité thermique plane</i>	46
I.2.1.a	Composites unidirectionnels.....	46
I.2.1.b	Cas des stratifiés – prise en compte de l’orientation des plis.....	46
I.2.2	<i>Modélisation de la conductivité thermique transverse</i>	47
I.2.2.a	Composites unidirectionnels.....	48
I.2.2.b	Cas des stratifiés.....	50
I.2.2.c	Cas des renforts tissés – prise en compte de l’ondulation des fibres.....	51
II	CARACTERISATION EXPERIMENTALE DES MATERIAUX DE L’ETUDE	51
II.1	PRESENTATION DES BANCS EXPERIMENTAUX DEVELOPPES AU LABORATOIRE.....	52
II.1.1	<i>Mesure de la conductivité plane – Méthode Copernic</i>	52
II.1.2	<i>Méthode de la chauffeurette instrumentée</i>	56
II.2	RESULTATS.....	59
II.2.1	<i>Mesures des propriétés du liquide seul</i>	59
II.2.1.a	Chaleur spécifique.....	59
II.2.1.b	Conductivité thermique.....	61
II.2.2	<i>Mesure des propriétés de la préforme sèche</i>	62
II.2.2.a	Conductivité plane.....	62
II.2.2.b	Conductivité transverse.....	64
II.2.3	<i>Mesure des propriétés du composite saturé</i>	66
II.2.3.a	Conductivité plane.....	66
II.2.3.b	Conductivité transverse.....	68
II.2.4	<i>Synthèse et comparaison avec les modèles usuels</i>	70
III	MODELISATION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE TRANSVERSE DU COMPOSITE	
INSATURE		71
III.1	PROCEDURES D’HOMOGENEISATION.....	71
III.1.1	<i>Principe général</i>	71
III.1.2	<i>Choix du VER</i>	72
III.1.3	<i>Homogénéisation par méthode des moyennes volumiques</i>	73
III.1.3.a	Principe et hypothèses.....	73
III.1.3.b	Développement des équations.....	74
III.1.4	<i>Homogénéisation périodique</i>	75
III.2	DEFINITION DE LA MICRO- ET DE LA MACRO-SATURATION.....	78
III.2.1	<i>Définition des grandeurs géométriques</i>	78
III.2.2	<i>Micro-saturation</i>	79
III.2.3	<i>Macro-saturation</i>	79
III.3	FAISCEAU DE COURBES DE CONDUCTIVITE TRANSVERSE.....	80
III.3.1	<i>Protocole</i>	80
III.3.2	<i>Résultats</i>	82
IV	CONCLUSION PARTIELLE	85

CHAPITRE IV - IDENTIFICATION DE LA SATURATION PAR ANALYSE THERMIQUE

I	ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE	93
I.1	CONTEXTE GENERAL.....	93
I.1.1	<i>Lien entre propriétés mécaniques et taux de vide résiduel</i>	93
I.1.2	<i>Les vides et leurs mécanismes de formation</i>	94
I.1.2.a	Les zones sèches.....	94
I.1.2.b	Micro- et macro-vides.....	95
I.1.2.c	Nombre capillaire optimal.....	96
I.1.3	<i>Devenir des vides créés</i>	98

I.1.4	<i>Solutions employées pour réduire le taux de vide</i>	99
I.1.5	<i>Mesure de la saturation</i>	100
I.1.5.a	Emission d'ondes ultrasonores.....	100
I.1.5.b	Observations optiques.....	100
I.1.5.c	Utilisation de capteurs conductimétriques.....	102
I.1.5.d	Utilisation de capteurs diélectriques.....	103
I.1.6	<i>Modélisation de la saturation</i>	104
I.1.6.a	Modélisation par des perméabilités relatives.....	105
I.1.6.b	Modélisation par loi de Darcy avec source.....	106
II	DISPOSITIF EXPERIMENTAL	107
II.1	PRESENTATION GENERALE.....	107
II.2	INSTRUMENTATION.....	109
II.2.1	<i>Instrumentation thermique</i>	109
II.2.2	<i>Instrumentation conductimétrique</i>	110
II.2.3	<i>Capteurs de pression</i>	112
II.3	SYSTEME D'ACQUISITION.....	112
II.4	RENFORT ET FLUIDE MODELE UTILISES.....	112
II.4.1	<i>Fluide modèle</i>	112
II.4.2	<i>Renfort fibreux</i>	113
II.5	PROCEDURES D'ETALONNAGE DES CAPTEURS.....	113
II.5.1	<i>Etalonnage des fluxmètres thermiques</i>	114
II.5.1.a	Conception d'un banc de caractérisation des fluxmètres.....	114
II.5.1.b	Procédure d'étalonnage des fluxmètres.....	118
II.5.2	<i>Etalonnage du capteur de conductimétrie</i>	121
II.5.2.a	Evolution de la conductivité électrique avec la saturation.....	121
II.5.2.b	Evolution de la conductivité électrique avec la température.....	125
II.6	PROTOCOLE EXPERIMENTAL.....	127
III	MODELISATION DES TRANSFERTS DE CHALEUR	129
III.1	MODELISATION DES TRANSFERTS DE CHALEUR.....	129
III.2	PROFIL DE LA COURBE DE SATURATION.....	130
III.3	ETUDE DE SENSIBILITE.....	132
IV	EXPERIENCES PRELIMINAIRES	134
IV.1	DETERMINATION DES CONDITIONS AUX LIMITES.....	134
IV.2	ESSAI SUR RENFORT SEC.....	135
IV.3	ESSAI SUR LIQUIDE MODELE SEUL.....	137
IV.4	ESSAI SUR COMPOSITE SATURE.....	138
V	RESULTATS ET IDENTIFICATION DE LA SATURATION	140
V.1	RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	140
V.2	IDENTIFICATION PAR LA THERMIQUE.....	143
V.2.1	<i>Protocole</i>	143
V.2.2	<i>Résultats</i>	144
V.2.3	<i>Incertitudes</i>	145
V.3	IDENTIFICATION PAR CONDUCTIMETRIE.....	146
V.3.1	<i>Conversion tension-saturation</i>	147
V.3.2	<i>Correction en température</i>	147
V.3.3	<i>Correction en temps</i>	147
V.4	COMPARAISON ET DISCUSSION.....	148
V.4.1.a	Comparaison des méthodes.....	149
V.4.1.b	Comparaison des injections.....	150
VI	CONCLUSION PARTIELLE	151

CHAPITRE V - APPROCHE PAR MODELISATION DIPHASIQUE : VERS L'IDENTIFICATION DES PERMABILITES RELATIVES

I	NOTIONS DE BASE POUR LA MODELISATION DES ECOULEMENTS DIPHASIQUES	158
I.1	LOI DE DARCY GENERALISEE.....	158
I.2	CONCEPT DE PERMEABILITE RELATIVE.....	159
I.2.1	<i>Définition et caractéristiques</i>	159
I.2.2	<i>Mesure des perméabilités relatives</i>	160
I.2.3	<i>Corrélations empiriques</i>	160

I.3	LA PRESSION CAPILLAIRE	162
I.3.1	<i>Définition et caractéristiques</i>	162
I.3.2	<i>Mesure de la pression capillaire</i>	164
I.3.3	<i>Corrélations empiriques</i>	165
II	EQUATION DE BUCKLEY-LEVERETT ET ETUDE DE SENSIBILITE	166
II.1	EQUATION DE BUCKLEY-LEVERETT	166
II.2	INFLUENCE DES PERMEABILITES RELATIVES SUR LA COURBE DE SATURATION	168
III	COUPLAGE DU SYSTEME PRESSION-SATURATION AVEC LES TRANSFERTS DE	
	CHALEUR.....	171
III.1	DESCRIPTION DU SYSTEME D'EQUATIONS	171
III.2	ESTIMATION DE LA PRESSION CAPILLAIRE	172
III.3	COUPLAGE AVEC LA THERMIQUE ET IDENTIFICATION DES PERMEABILITES RELATIVES	174
III.4	RESULTATS ET DISCUSSION	175
IV	CONCLUSION PARTIELLE.....	177
 CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES.....		179
 ANNEXE A : Homogénéisation par prise de moyenne volumique : développement des équations		183
ANNEXE B : Algorithme de Filtrage de Savitzky-Golay.....		189
ANNEXE C : Lien entre la saturation totale et les micro- et macro-saturations.....		191
ANNEXE D : Schéma électrique de la méthode de la chaufferette instrumentée.....		193
ANNEXE E : Calcul d'incertitudes composées.....		194
ANNEXE F : Démonstration du modèle de Buckley-Leverett.....		199
 INDEX ALPHABETIQUE DES REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....		201

LISTE DES FIGURES

CHAPITRE I

FIGURE I- 1 : PARTENAIRES DU PROGRAMME ANR RTM-PLAST	2
--	---

CHAPITRE II

FIGURE II- 1 : PART CROISSANTE DES MATERIAUX COMPOSITES DANS LES AVIONS AIRBUS	6
FIGURE II- 2 : PART DES MATERIAUX COMPOSITES DANS L’AIRBUS A350 (SOURCE : AIRBUS)	7
FIGURE II- 3 : DEROULEMENT D’UN PROCEDE TYPIQUE DE RTM.....	8
FIGURE II- 4 : PRINCIPAUX TYPES DE FIBRES [4].....	9
FIGURE II- 5 : DIFFERENTES ARMURES DE RENFORT	10
FIGURE II- 6 : DISTRIBUTION DE LA TAILLE DES PORES DANS UN RENFORT FIBREUX [7].....	13
FIGURE II- 7 : COMPARAISON DE LA VISCOSITE ENTRE UNE RESINE EPOXY ET PLUSIEURS THERMOPLASTIQUES [8].	14
FIGURE II- 8 : EXEMPLE DE FIBRES COMELEES.....	15
FIGURE II- 9 : SCHEMA DE PRINCIPE D’UNE POLYMERISATION PAR OUVERTURE DE CYCLE.....	17
FIGURE II- 10 : COMPARAISON DES VISCOSITES DE DIFFERENTES RESINES POLYMERES POUR LA MISE EN FORME CLASSIQUE OU PAR MOULAGE REACTIF [11].....	18
FIGURE II- 11 : DISPERSION MASSIQUE LONGITUDINALE DANS UNE CASCADE DE MELANGEURS.....	18
FIGURE II- 12 : CELLULE UNITAIRE REPRESENTANT UN MILIEU PERIODIQUE DESORDONNE UTILISEE PAR DA SILVEIRA [18]	21
FIGURE II- 13 : RESULTATS DES SIMULATIONS DE MONTE CARLO AVEC DES THERMIONS POUR LA CONDUCTIVITE EFFECTIVE SELON X (A GAUCHE) ET SELON Y (A DROITE)	22
FIGURE II- 14 : PRINCIPE DE MESURE DU COEFFICIENT DE DISPERSION LONGITUDINALE EN REGIME STATIONNAIRE AVEC UNE EXCITATION THERMIQUE PAR INFRA-ROUGE (A) OU PAR CHAUFFAGE ELECTRIQUE (B). LA FIGURE (C)REPRESENTE LE PROFIL DE TEMPERATURE POUR DEUX VITESSES DIFFERENTES.	22
FIGURE II- 15 : METHODE TRANSITOIRE DEVELOPPEE PAR GUNN [21]. L’EXCITATION EST IMPOSEE SUR LA FACE GAUCHE ET LA REPONSE THERMIQUE EST MESUREE SUR LA FACE DE DROITE.	23
FIGURE II- 16 : CARACTERISATION DE LA DISPERSION LONGITUDINALE PAR EXCITATION PAR UN ECHELON DE TEMPERATURE.....	24
FIGURE II- 17 : RESULTATS EXPERIMENTAUX DE LEVEC ET CARBONELL [22].....	24
FIGURE II- 18 : POSITION DES THERMOCOUPLES ET DE LA SOURCE LINEIQUE POUR LA DETERMINATION DES COEFFICIENTS DE DISPERSION [23].....	25
FIGURE II- 19 : COEFFICIENTS DE DISPERSION LONGITUDINALE ESTIMES EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLLET	25
FIGURE II- 20 : PROFILS DE TEMPERATURE (A GAUCHE), ET EVOLUTION DE LA CONDUCTIVITE TRANSVERSE EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLLET (A DROITE).....	26
FIGURE II- 21 : INFLUENCE DE LA DISPERSION THERMIQUE TRANSVERSE SUR LE PROFIL DE TEMPERATURE FINAL AU CENTRE DE LA PIECE [25].	28
FIGURE II- 22 : EVOLUTION DES FLUX THERMIQUES A L’INTERFACE PIECE/MOULE AUX EMBLEMES DES CAPTEURS – COMPARAISON ENTRE LES RESULTATS EXPERIMENTAUX ET NUMERIQUES [25].....	28
FIGURE II- 23 : EVOLUTION DES NOMBRES DE NUSSELT AUX EMBLEMES DES CAPTEURS – COMPARAISON ENTRE LES RESULTATS EXPERIMENTAUX ET NUMERIQUES [25].....	28

CHAPITRE III

FIGURE III- 1 : SCHEMA DE PRINCIPE DE LA PLAQUE CHAUDE GARDEE	36
FIGURE III- 2 : DECOUPE D’UN ECHANTILLON SERVANT POUR LA MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE DANS LA DIRECTION X	37
FIGURE III- 3 : PRINCIPE DE LA MESURE FLASH.....	38
FIGURE III- 4 : REPONSE THERMIQUE TYPIQUE D’UNE CARACTERISATION PAR FIL CHAUD	39
FIGURE III- 5 : ALLURE DES TEMPERATURES A DIFFERENTES ABCISSES D’UN BARREAU EN POLYPROPYLENE.[34]	40
FIGURE III- 6 : VUE DETAILLEE D’UNE SONDE HOT DISK EN KAPTON™	41
FIGURE III- 7 : SCHEMA DE PRINCIPE DU HOT DISK EN MODE SYMETRIQUE.....	41
FIGURE III- 8 : SONDE C-THERM DE TCI	42
FIGURE III- 9 : SCHEMA DE PRINCIPE D’UNE DSC.....	44
FIGURE III- 10 : DIRECTIONS PRINCIPALES DE L’UD.....	46

FIGURE III- 11 : DECOMPOSITION D'UN SERGE EN UNE SOMME DE PLIS D'UD	46
FIGURE III- 12 : COMPARAISON DE PLUSIEURS MODELES DE CONDUCTIVITE TRANSVERSE EN FONCTION DU TAUX DE FIBRES.....	48
FIGURE III- 13 : COMPARAISON DES CONDUCTIVITES EXPERIMENTALES DE LA PREFORME SECHE, DU COMPOSITE CRU ET DU COMPOSITE RETICULE AVEC LES MODELES DE MAXWELL-EUCKEN ET DE CHARLES & WILSON POUR UN COMPOSITE CARBONE-EPOXY [45].....	49
FIGURE III- 14 : ANGLE D'ONDULATION ENTRE UNE MECHE ET LE PLAN X-Y.....	51
FIGURE III- 15 : SCHEMA DU MOULE VIDE (A GAUCHE) ET INSTRUMENTE (A DROITE).	53
FIGURE III- 16 : COUPE DU MOULE INSTRUMENTE PLACE ENTRE LES PLATEAUX CHAUFFANTS.....	53
FIGURE III- 17 : DOMAINE 2D UTILISE POUR LA SIMULATION DES TRANSFERTS DE CHALEUR.....	54
FIGURE III- 18 : SENSIBILITE DE LA TEMPERATURE A DIFFERENTS PARAMETRES : A LA RESISTANCE THERMIQUE DE CONTACT R_t (A), A LA CONDUCTIVITE PLANE (B), A LA CAPACITE CALORIFIQUE VOLUMIQUE (C), OU ENCORE A LA CONDUCTIVITE TRANSVERSE (D).	56
FIGURE III- 19 : NOUVELLE CONFIGURATION DU BANC EXPERIMENTAL.	57
FIGURE III- 20 : FACE INFERIEURE DE LA CHAUFFERETTE SUR LAQUELLE ON DISTINGUE LA ZONE CENTRALE DE CHAUFFAGE (EN JAUNE), ET LES 7 THERMOCOUPLES A SA SURFACE.	58
FIGURE III- 21 : MESURE DE LA CHALEUR SPECIFIQUE DU FLUIDE MODELE.	60
FIGURE III- 22 : SCHEMA DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL DE MESURE DE LA CONDUCTIVITE EN LIQUIDE.	61
FIGURE III- 23 : EVOLUTION DE LA CONDUCTIVITE DU MELANGE LIQUIDE EN FONCTION DE LA TEMPERATURE	62
FIGURE III- 24 : APERÇU DU CRITERE DE MINIMISATION EN FONCTION DES DEUX PARAMETRES A ESTIMER	63
FIGURE III- 25 : COMPARAISON DES TEMPERATURES EXPERIMENTALES ET CALCULEES POUR LE RENFORT SEC (A GAUCHE), ET RESIDUS ASSOCIES (A DROITE)	63
FIGURE III- 26 : GARDES D'EPaisseur CONTROLEE POUR LES ESSAIS EN PLAQUE CHAUDE GARDEE.	64
FIGURE III- 27 : EVOLUTION DE LA CONDUCTIVITE TRANSVERSE DU RENFORT SEC EN FONCTION DU TAUX VOLUMIQUE DE FIBRES.	64
FIGURE III- 28 : EVOLUTION DE LA CONDUCTIVITE TRANSVERSE DU RENFORT SEC EN FONCTION DE LA TEMPERATURE.....	64
FIGURE III- 29 : MONTAGE EXPERIMENTAL PERMETTANT L'INJECTION D'UN FLUIDE AUTOUR DE LA SONDE HOT DISK. A GAUCHE, LES DEUX DEMI-MOULES ET LEUR RENFORT AVEC LA SONDE. A DROITE, LE MOULE FERME QUE L'ON PLONGE DANS LE BAIN D'UN THERMOREGULATEUR.	65
FIGURE III- 30 : MESURES HOT DISK DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE TRANSVERSE DU RENFORT SEC EN FONCTION DE LA TEMPERATURE.....	66
FIGURE III- 31 : COMPARAISON DES TEMPERATURES EXPERIMENTALES ET CALCULEES POUR LE COMPOSITE SATURE (A GAUCHE) ET RESIDUS ASSOCIES (A DROITE).	67
FIGURE III- 32 : EVOLUTION DES TEMPERATURES DU CENTRE DE LA CHAUFFERETTE ET DANS LES DEUX DIRECTIONS X ET Y DE L'UD	68
FIGURE III- 33 : MESURES HOT DISK SUR ECHANTILLON COMPOSITE IMPREGNE EN FONCTION DE LA TEMPERATURE.	69
FIGURE III- 34 : COMPARAISON EXPERIMENTAL/NUMERIQUE POUR LE TC8 SITUÉ AU CENTRE DE LA CHAUFFERETTE EN COMPOSITE SATURE.....	69
FIGURE III- 35 : PRINCIPE DE L'HOMOGENEISATION	71
FIGURE III- 36 : CHOIX D'UN VER POUR LA PROPRIETE DE POROSITE D'UN MILIEU POREUX D'APRES [68].	72
FIGURE III- 37 : ETAPES PRINCIPALES D'UNE PROCEDURE D'HOMOGENEISATION PAR LA METHODE DES MOYENNES VOLUMIQUES.....	73
FIGURE III- 38 : TORTUOSITE AU SENS HYDRODYNAMIQUE : EGAL A L'/L	77
FIGURE III- 39 : DEFINITION DE LA MICRO-SATURATION	79
FIGURE III- 40 : DEFINITION DE LA MACRO-SATURATION	80
FIGURE III- 41 : SCHEMA DU PRINCIPE DE L'HOMOGENEISATION A DOUBLE ECHELLE	81
FIGURE III- 42 : EVOLUTION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE DU COMPOSITE EN FONCTION DE LA MICRO-SATURATION. LA MACRO-SATURATION EST FIXEE A 1 DANS CE CAS.....	82
FIGURE III- 43 : FAISCEAU DE COURBES DE LA CONDUCTIVITE TRANSVERSE EN FONCTION DE LA SATURATION TOTALE ET DE LA REPARTITION S_μ/S_M	83
FIGURE III- 44 : VIDE RESIDUEL EN FONCTION DU PARAMETRE ALPHA	84
FIGURE III- 45 : TAUX DE VIDE EN FONCTION DU DEBIT APRES SATURATION MAXIMALE (EXPERIENCE MENEES A DEBIT CONSTANT SUR FLUIDE EAU-GLYCEROL PAR SEBASTIEN GUEROULT) [70]	85

CHAPITRE IV

FIGURE IV- 1 : INFLUENCE DU TAUX DE VIDE VOLUMIQUE SUR LA RESISTANCE AU CISAILLEMENT INTER-LAMINAIRE D'UN MATERIAU COMPOSITE. [73].....	93
FIGURE IV- 2 : LES PRINCIPALES CAUSES DE FORMATION DES VIDES DANS LES PROCEDES LCM.....	94
FIGURE IV- 3 : EXEMPLES DE MACRO-VIDES ENTRE PLUSIEURS MECHE [77].....	96
FIGURE IV- 4 : EXEMPLES DE MICRO-VIDES AU SEIN D'UNE MEME MECHE [77].....	96
FIGURE IV- 5 : SCHEMA REPRESENTANT LES MECANISMES DE FORMATION DES MACRO-VIDES (A), LORSQUE LA VITESSE EST FAIBLE, ET DES MICRO-VIDES (B), LORSQUE LA VITESSE EST PLUS ELEVEE.	96
FIGURE IV- 6 : EVOLUTION DU TAUX DE VIDES EN FONCTION DU NOMBRE CAPILLAIRE MODIFIE SELON PATEL (A GAUCHE), ET REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES ZONES DE CREATION DES MICRO- ET MACRO-VIDES (A DROITE).....	98
FIGURE IV- 7 : BANC EXPERIMENTAL DEDIE AUX MONTEES CAPILLAIRES [86].....	98
FIGURE IV- 8 : DISPOSITIF DE MESURE DE LA SATURATION PAR TRANSMISSION DE LA LUMIERE VISIBLE : (A) MOULE RTM AVEC LA CAMERA MUNIE DE SES FILTRES. (B) IMAGE DE LA SATURATION D'UN RENFORT DE VERRE PAR UNE RESINE VINYLESTER. (C) DIVISION DES REGIONS ETUDIEES EN VOLUME ELEMENTAIRES REPRESENTATIFS. [90].....	101
FIGURE IV- 9 : COMPARAISON DES SATURATIONS MESUREES ET CALCULEES POUR DIFFERENTS NOMBRES CAPILLAIRES, A UN INSTANT DONNE (EN HAUT). IMAGE TIREE DE L'ACQUISITION VIDEO A T=10S (EN BAS). [91].....	102
FIGURE IV- 10 : VUE DU DESSUS DU MOULE ET DES CAPTEURS [94].....	103
FIGURE IV- 11 : EVOLUTION DE LA FORME DU FRONT DE RESINE EN FONCTION DE LA POSITION LONGITUDINALE X. [94].....	103
FIGURE IV- 12 : CONFIGURATION DU CAPTEUR SANS ELECTRODE DE GARDE	103
FIGURE IV- 13 : CONFIGURATION ELECTRIQUE AVEC ELECTRODE DE GARDE	103
FIGURE IV- 14 : SCHEMA DU MONTAGE ELECTRIQUE DU CAPTEUR DIELECTRIQUE	104
FIGURE IV- 15 : PROFILS NUMERIQUES DE SATURATION ET DE PRESSION POUR UNE INJECTION 1D A DEBIT CONSTANT OBTENUS PAR GARCIA [96]	106
FIGURE IV- 16 : VUE DE LA PLAQUE INFERIEURE ET DE L'ECHANGEUR	107
FIGURE IV- 17 : VUE GENERALE DU MOULE FERME	107
FIGURE IV- 18 : SCHEMA COMPLET DU BANC EXPERIMENTAL	108
FIGURE IV- 19 : SCHEMA D'UN CAPTEUR DE FLUX THERMIQUE	109
FIGURE IV- 20 : CAPTEUR DE FLUX THERMIQUE A GRADIENT TANGENTIEL	109
FIGURE IV- 21 : SCHEMA DE PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU CAPTEUR CONDUCTIMETRIQUE.....	110
FIGURE IV- 22 : POSITIONNEMENT ET INSTRUMENTATION DE L'ELECTRODE CONDUCTIMETRIQUE INFERIEURE	111
FIGURE IV- 23 : ORGANIGRAMME DES SYSTEMES D'ACQUISITION ASSOCIES AU BANC EXPERIMENTAL.....	112
FIGURE IV- 24 : PRISE DE VUE D'UN PLI DE RENFORT DE VERRE ET GROS PLAN SUR UNE MECHE LE CONSTITUANT.	113
FIGURE IV- 25 : VUE DE LA PLAQUE INFERIEURE, DE L'ECHANGEUR ASSOCIE, AINSI QUE DU SYSTEME D'INSERTS	114
FIGURE IV- 26 : DETAIL DES DIFFERENTES COUCHES DU MOULE (A GAUCHE), ET VUE GLOBALE DU DISPOSITIF (A DROITE).....	115
FIGURE IV- 27 : ECLATE DU BANC D'ETALONNAGE REPRESENTE AVEC LA METROLOGIE THERMIQUE	115
FIGURE IV- 28 : IMPORTANCE DU FLUX ABSORBE PAR LA TOLE D'ALUMINIUM AU NIVEAU DE CHAQUE CAPTEUR S ₁ , S ₂ ET S ₃	117
FIGURE IV- 29 : COMPARAISON ENTRE LES FLUX DONNES PAR LES TROIS CAPTEURS ET LEURS VALEURS THEORIQUES RESPECTIVES.	118
FIGURE IV- 30 : PROTOCOLE D'ETALONNAGE DES CAPTEURS PAR VARIATION DES POSITIONS DES THERMOCOUPLES.	119
FIGURE IV- 31 : CRITERE DE MINIMISATION DE L'ECART DE TEMPERATURE EN FONCTION DE LA POSITION DES THERMOCOUPLES TC1 ET TC2 POUR LES CAPTEURS S2 (A GAUCHE) ET S3 (A DROITE). LES POSITIONS ORIGINALES DES THERMOCOUPLES SONT SYMBOLISEES PAR UNE BARRE VERTICALE.	120
FIGURE IV- 32 : APERÇU DES COURBES EXPERIMENTALES ET NUMERIQUES DE TC1 ET TC2 POUR LES DEUX CAPTEURS, AINSI QUE LES RESIDUS ASSOCIES.....	120
FIGURE IV- 33 : VISUALISATION DES FLUX DES CAPTEURS S1, S2 ET S3 AVANT ET APRES ETALONNAGE.....	121
FIGURE IV- 34 : CELLULE TEST DE CONDUCTIMETRIE ELECTRIQUE	122
FIGURE IV- 35 : EVOLUTION DE L'ERREUR RELATIVE EN FONCTION DU NOMBRE DE FIBRES CHOISI	123
FIGURE IV- 36 : DENSITE DE COURANT POUR DES DOMAINES ALEATOIRES COMPOSES DE 90 A 265 FIBRES.....	123
FIGURE IV- 37 : COMPARAISON DES RESULTATS EXPERIMENTAUX (CELLULE TEST), DES RESULTATS NUMERIQUES (DISPERSION DE DISQUES ALEATOIRE), ET DU MODELE DE MAXWELL-WAGNER.	124

FIGURE IV- 38 : PROFIL DE POROSITE TYPIQUE EN PROCHE PAROI. ICI LA TAILLE DES MACRO-BILLES EST TELLE QUE L'ESPACE INTER-ELECTRODES NE REPRESENTE QUE 8 PARTICULES.	125
FIGURE IV- 39 : EVOLUTION DE LA TEMPERATURE DES ELECTRODES CONDUCTIMETRIQUES ET DE LA TENSION MESUREE AUX BORNES DE U_{SHUNT} AU COURS DE DEUX ECHELONS DE FLUX.	126
FIGURE IV- 40 : TENSION MESUREE AUX BORNES DE LA RESISTANCE SHUNT EN FONCTION DE LA MOYENNE DE LA TEMPERATURE DES ELECTRODES.	127
FIGURE IV- 41 : EVOLUTION DE LA VISCOSITE D'UN MELANGE DE 87% DE GLYCEROL ET DE 13% D'EAU EN FONCTION DE LA TEMPERATURE [100].	128
FIGURE IV- 42 : VUE DU RENFORT DISPOSE DANS LE MOULE AVANT UNE INJECTION.	128
FIGURE IV- 43 : MODELISATION D'UNE COURBE TYPIQUE DE SATURATION GRACE AUX PARAMETRES L , Y_1 ET S_{MAX}	131
FIGURE IV- 44 : SENSIBILITES DES FLUX DE CHALEUR AUX PARAMETRES DE LA COURBE DE SATURATION AINSI QU'A Λ_x ET (PCP).....	133
FIGURE IV- 45 : SCHEMA DU MOULE ET DE SES CONDITIONS AUX LIMITES	134
FIGURE IV- 46 : FLUX THERMIQUES CORRIGES DONNES PAR LES CAPTEURS PLACES EN SURFACE DE VERRE.	136
FIGURE IV- 47 : TEMPERATURES DE SURFACE DU VERRE ET COEFFICIENT H ESTIME	136
FIGURE IV- 48 : EVOLUTION DES TEMPERATURES DES FLUXMETRES SOUMIS A DES ECHELONS DE FLUX.....	137
FIGURE IV- 49 : COMPARAISON ENTRE LES FLUX EXPERIMENTAUX (S_1 , S_2 ET S_3) ET LE FLUX ISSU DE LA SIMULATION NUMERIQUE POUR LE CAS DU RENFORT SEC	137
FIGURE IV- 50 : COMPARAISON ENTRE LES FLUX EXPERIMENTAUX (S_1 , S_2 ET S_3) ET LE FLUX ISSU DE LA SIMULATION NUMERIQUE POUR LE CAS DU LIQUIDE SEUL.	138
FIGURE IV- 51 : COMPARAISON ENTRE LES FLUX EXPERIMENTAUX (S_1 , S_2 ET S_3) ET LE FLUX ISSU DE LA SIMULATION NUMERIQUE POUR LE CAS DU COMPOSITE SATURE	139
FIGURE IV- 52 : TEMPERATURES EXPERIMENTALE ET NUMERIQUE A CŒUR DE PREFORME.....	139
FIGURE IV- 53 : EVOLUTION DES THERMOCOUPLES COMPOSANT LES FLUXMETRES PENDANT L'INJECTION.	141
FIGURE IV- 54 : FLUX THERMIQUES TRANSVERSES EXPERIMENTAUX AU COURS DE L'INJECTION.....	142
FIGURE IV- 55 : CARTOGRAPHIE DES FLUX DE CHALEUR TRANSVERSES PENDANT L'INJECTION. L'ENCADRE MET EN EVIDENCE LES TRANSFERTS CONDUCTIFS PLANS AU VOISINAGE DU FRONT.	143
FIGURE IV- 56 : POSITION DU FRONT AU CENTRE DE LA PREFORME EN FONCTION DU TEMPS(INJECTION 1).....	144
FIGURE IV- 57 : COMPARAISON DES FLUX NUMERIQUES ET EXPERIMENTAUX PENDANT L'INJECTION 1.	145
FIGURE IV- 58 : EVALUATION DES INCERTITUDES SUR L'ESTIMATION DES PARAMETRES L , Y_1 ET S_{MAX}	146
FIGURE IV- 60 : EVOLUTION DE T_{ELEC_BAS} ET T_{ELEC_HAUT} , ET EFFET DE LA CORRECTION EN TEMPERATURE.	147
FIGURE IV- 60 : PRINCIPE DE CORRECTION DE LA COURBE DE SATURATION EN TEMPS	148
FIGURE IV- 61 : EFFET DE LA CORRECTION EN TEMPS DE LA COURBE DE SATURATION.....	148
FIGURE IV- 62 : COMPARAISON DES RESULTATS ISSUS DE L'ANALYSE THERMIQUE ET DE LA METHODE CONDUCTIMETRIQUE POUR L'INJECTION 1 (A GAUCHE) ET 2 (A DROITE)	149
FIGURE IV- 63 : COMPARAISON DES METHODES POUR LES DEUX INJECTIONS EN FONCTION DU TEMPS NORMALISE.	149
FIGURE IV- 64 : EVALUATION DES NOMBRES CAPILLAIRES ASSOCIES AUX INJECTIONS 1 ET 2	150
FIGURE IV- 65 : CAPTURE VIDEO FAISANT APPARAÎTRE DES DIGITATIONS PENDANT L'INJECTION N°1	150

CHAPITRE V

FIGURE V- 1 : COURBES TYPQUES DE PERMEABILITES RELATIVES EN FONCTION DE LA SATURATION SELON [108].	160
FIGURE V- 2 : ANGLE DE CONTACT DANS UN CAPILLAIRE A L'ETAT STATIONNAIRE, LORS DU DEPLACEMENT D'UN FLUIDE NON MOUILLANT PAR UN FLUIDE MOUILLANT.	162
FIGURE V- 3 : COURBE DE PRESSION CAPILLAIRE TYPIQUE D'APRES KILLINS ET AL. [114].....	163
FIGURE V- 4 : PRINCIPE DE LA MESURE PAR LA METHODE DU DIAPHRAGME	164
FIGURE V- 5 : EVOLUTION DE LA PRESSION CAPILLAIRE EN FONCTION DE LA SATURATION EFFECTIVE : COMPARAISON ENTRE LES MODELES DE BROOKS & COREY ET VAN GENUCHTEN (L'AMPLITUDE EST CHOISIE ARBITRAIREMENT).	166
FIGURE V- 6 : COURBES DE SATURATION DE BUCKLEY-LEVERETT A DIFFERENTS INSTANTS	168
FIGURE V- 7 : ALLURE DES COURBES DE PERMEABILITE RELATIVE POUR PLUSIEURS VALEURS DE L'EXPOSANT N DU MODELE DE COREY.	169
FIGURE V- 8 : INFLUENCE DE L'EXPOSANT N DU MODELE DE COREY SUR LES COURBES DE SATURATION.....	169
FIGURE V- 9 : VARIATION DE L'EXPOSANT DE LA PERMEABILITE RELATIVE AU FLUIDE MOUILLANT K_{RW} (A GAUCHE), ET SON INFLUENCE SUR LA COURBE DE SATURATION (A DROITE)	170

FIGURE V- 10 : VARIATION DE L'EXPOSANT DE LA PERMEABILITE RELATIVE AU FLUIDE NON MOUILLANT K_{RNW} (A GAUCHE), ET SON INFLUENCE SUR LA COURBE DE SATURATION (A DROITE).....	170
FIGURE V- 11 : EVOLUTION DE LA PRESSION CAPILLAIRE ESTIMEE GRACE AU MODELE DE VAN GENUCHTEN. LA DERIVEE PAR RAPPORT A S_w EST TRACEE EN VERT.	173
FIGURE V- 12 : REGULARISATION DES COURBES DE PRESSION CAPILLAIRE DE VAN GENUCHTEN.	173
FIGURE V- 13 : CONDITIONS AUX LIMITES UTILISEES POUR LE COUPLAGE THERMIQUE/PRESSION-SATURATION..	175
FIGURE V- 14 : ALLURE DES COURBES DE SATURATION (A GAUCHE) ET DES COURBES DE PRESSION (A DROITE) A DIFFERENTS INSTANTS POUR LES PERMEABILITES RELATIVES ESTIMEES.	176
FIGURE V- 15 : COMPARAISON DES FLUX THERMIQUES TRANSVERSES NUMERIQUES ET EXPERIMENTAUX	176
FIGURE V- 16 : PERMEABILITES RELATIVES ESTIMEES.....	176

LISTE DES TABLEAUX

CHAPITRE I

TABLEAU 1 : ENJEUX ECONOMIQUES SUR LE GAIN DE MASSE, D'APRES BENTOUMI [1].....	2
--	---

CHAPITRE II

TABLEAU 1 : TYPES D'OUTILLAGES ADAPTES AU LCM ET LEURS PROPRIETES	11
TABLEAU 2 : COMPARAISON DES TEMPERATURES POUR LA MISE EN FORME EN FONDU ET POUR LE PROCEDE REACTIF.	18

CHAPITRE III

TABLEAU 1 : RECAPITULATIF DES CARACTERISTIQUES DES DIFFERENTES METHODES DE CARACTERISATION THERMIQUE.....	43
TABLEAU 2 : PANORAMA DES METHODES EMPLOYEES POUR LA DETERMINATION DES PROPRIETES THERMIQUES DU COMPOSITE.....	52
TABLEAU 3 : PROPRIETES DE L'EAU ET DU GLYCEROL PUR A 25°C (VALEURS ISSUES DE TABLES [56])	61
TABLEAU 4 : PARAMETRES ESTIMES PAR LA METHODE COPERNIC POUR LE RENFORT SEC	63
TABLEAU 5 : PARAMETRES ESTIMES POUR LE COMPOSITE SATURE	66
TABLEAU 6 : CONDUCTIVITES PLANES ESTIMEES EN SATURE A 25°C.....	68
TABLEAU 7 : VALEURS DE λ ET C_p ESTIMEES POUR LE COMPOSITE SATURE A 25°C	70
TABLEAU 8 : SYNTHESE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX ET COMPARAISON AVEC LES MODELES USUELS.	70
TABLEAU 9 : CONDUCTIVITES DES TROIS PHASES UTILISEES DANS LA MODELISATION	81
TABLEAU 10 : PARAMETRES GEOMETRIQUES UTILISES DANS LA MODELISATION.....	81

CHAPITRE IV

TABLEAU 1 : PROPRIETES DES ELEMENTS CHAUFFANTS TRANSPARENTS	108
TABLEAU 2 : DENOMINATIONS, TYPES ET EMPLACEMENTS DE L'ENSEMBLE DES THERMOCOUPLES INTEGRES AU BANC EXPERIMENTAL.....	110
TABLEAU 3 : PARAMETRES DU CAPTEUR DE CONDUCTIMETRIE	111
TABLEAU 4 : PROPRIETES PHYSIQUES DU RENFORT DE VERRE ET DU LIQUIDE MODELE.	113
TABLEAU 5 : PROPRIETES THERMOPHYSIQUES DES MATERIAUX CONSTITUANT LE BANC.....	116
TABLEAU 6 : POSITIONS DES THERMOCOUPLES DANS CHAQUE CAPTEUR APRES L'ETALONNAGE (* : POSITIONS RECALCULEES).....	121
TABLEAU 7 : CONTRASTES DE CONDUCTIVITE THERMIQUE TRANSVERSE ET DU TERME CAPACITIF PENDANT L'INJECTION.	129
TABLEAU 8 : DONNEES THERMOPHYSIQUES DE LA MODELISATION (LES VALEURS AVEC ASTERISQUE SONT DES DONNEES FABRICANT).....	136
TABLEAU 9 : PROPRIETES THERMOPHYSIQUES DU LIQUIDE MODELE.....	137
TABLEAU 10 : PROPRIETES THERMOPHYSIQUES DU COMPOSITE SATURE	138
TABLEAU 11 : CONDITIONS OPERATOIRES POUR LES INJECTIONS 1 ET 2	140
TABLEAU 12 : PARAMETRES ESTIMES DE LA COURBE DE SATURATION POUR LES INJECTIONS 1 ET 2	145
TABLEAU 13 : INCERTITUDES SUR LES PARAMETRES L , Y_1 ET S_{MAX} RESULTANT DU CHOIX DE A.	146

CHAPITRE V

TABLEAU 1 : PARAMETRES UTILISES POUR LA MODELISATION DE L'EQUATION DE BUCKLEY-LEVERETT.....	167
TABLEAU 2 : PROPRIETES DE MOUILLABILITE DU FLUIDE MODELE ET PARAMETRES GEOMETRIQUES LIES AU RENFORT	172
TABLEAU 3 : PARAMETRES DU MODELE DE SATURATION UTILISES POUR LA MODELISATION.....	175

Nomenclature

Lettres et symboles

a	Diffusivité thermique	$m^2.s^{-1}$
a, b	Dimensions d'une mèche	m
A_{fs}	Aire de l'interface solide-fluide	m^2
a_v	Surface spécifique	m^2
C	Concentration	$kg.m^{-3}$
c	Dimension du VER microscopique	m
c_1, c_2	Dimensions du VER macroscopique	m
Ca	Nombre capillaire	
Ca^*	Nombre capillaire modifié	
C_p	Chaleur spécifique	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
d	Diamètre des pores	m
D	Demi-période d'ondulation d'une mèche	m
D_f	Coefficient de diffusion moléculaire	$m^2.s^{-1}$
d_f	Diamètre des fibres	m
D_w	Coefficient de diffusion numérique	
e	Épaisseur de l'échantillon	m
E	Champ électrique	$V.m^{-1}$
F	Facteur de forme	
F_0	Terme modélisant les pertes thermiques	
f_w	Fonction de débit fractionné	
G	Conductance électrique	S
h	Coefficient de transfert convectif	$W.m^{-2}.K^{-1}$
H	Enthalpie	J
i	Intensité électrique	A
J	Densité de courant	$A.m^{-2}$
K	Perméabilité géométrique	m^2
k	Coefficient de la fonction de Heaviside	
k_r	Perméabilité relative	
L	Longueur caractéristique	m
l	Longueur de la zone insaturée	
l_u	Longueur caractéristique de l'écoulement microscopique	m
m	Masse	kg
Nu	Nombre de Nusselt	
P	Pression	Pa
p_b	Charge capillaire critique	Pa
p_c	Pression capillaire	Pa
Pe	Nombre de Péclet	
Q	Quantité de chaleur	J
q	Débit total	$m^3.s^{-1}$
R	Résistance électrique	Ω
r_f	Rayon des fibres	m
R_t	Résistance thermique de contact	$m^2.K^{-1}.W^{-1}$
RTC	Résistance thermique de contact sur l'échangeur	$m^2.K^{-1}.W^{-1}$
S	Surface de l'échantillon	m^2
S_μ	Micro-saturation	
$S_{corrigée}$	Saturation corrigée en temps	
S_e	Saturation effective	
S_M	Macro-saturation	

S_{max}	Valeur maximale de la saturation en début de préforme	
S_T	Saturation totale	
T	Température	K
$t_{1/2}$	Temps de demi-montée en température	s
$T_{ambiant}$	Température ambiante	K
$T_{échangeur}$	Température de l'échangeur	K
$T_{élec_bas}$	Température mesurée sur l'électrode inférieure de conductimétrie	K
$T_{élec_haut}$	Température mesurée sur l'électrode supérieure de conductimétrie	K
T_{Vi}	Température de surface du verre mesurée à la position i	K
u	vitesse moyenne interstitielle du fluide (au sens de Darcy)	m.s ⁻¹
U_{shunt}	Tension aux bornes de la résistance shunt	V
V	Tension	V
V_{comp}	Volume total du composite	m ³
$V_{mèches}$	Volume total des mèches	m ³
V_p	Volume total des micro-porosités	m ³
V_P	Volume total des macro-porosités	m ³
w	Fraction massique	
X_r	Paramètre réduit pour le calcul des incertitudes	
X_w	Sensibilité réduite à un paramètre w	
y_i	Valeur de la saturation à la rupture de pente	
z_{TCi}	Position du thermocouple i	m
$\langle \psi_f \rangle^f$	Moyenne intrinsèque de phase	
$\bar{\alpha}$	Tenseur de diffusivité effectif	m ² .s ⁻¹
$\langle \psi_f \rangle$	Moyenne de phase	
$\ \ $	Norme	
\bar{T}	Déviations spatiales de la température	K
$\langle \psi \rangle$	Moyenne	
$\ $	Direction parallèle	
∇^*	Gradient adimensionnel	
\perp	Direction transverse	

Lettres grecques

$\bar{\lambda}_e$	Tenseur de conductivité effectif	W.m ⁻¹ .K ⁻¹
$\bar{\varphi}_k^n$	Flux thermique expérimental mesuré par le capteur k à l'instant n	
Φ_f^c	Taux de fibres volumique dans le composite	
Φ_f^m	Taux de fibres volumique dans la mèche	
Φ_m^c	Taux de mèches volumique dans le composite	
$\bar{\alpha}$	Angle d'ondulation moyen	°
α_d	Facteur d'effet dispersif	
ε	Porosité	
θ_i	Angle formé entre le pli i et l'axe considéré	°
λ_1	Conductivité thermique longitudinale d'un UD	W.m ⁻¹ .K ⁻¹
λ_2	Conductivité thermique transverse d'un UD	W.m ⁻¹ .K ⁻¹
λ_f	Conductivité thermique de la fibre	W.m ⁻¹ .K ⁻¹
λ_r	Conductivité thermique de la résine	W.m ⁻¹ .K ⁻¹
φ_k^n	Flux thermique numérique mesuré par le capteur k à l'instant n	W.m ⁻²
μ	Viscosité dynamique	Pa.s
α	Ratio micro-saturation/macro-saturation	
β	Vecteur des paramètres à estimer	
Γ	Frontière	
γ_{lv}	Tension de surface liquide-vapeur	N.m ⁻¹

ε_f	Fraction volumique de fluide	
ε_s	Fraction volumique de solide	
θ	Angle de contact du liquide sur la solide	°
λ	Conductivité thermique	$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
ρ	Masse volumique	kg.m^{-3}
σ	Conductivité électrique	S.m^{-1}
σ_0	Conductivité électrique du liquide	S.m^{-1}
τ	temps caractéristique	
φ	Flux thermique surfacique	W.m^{-2}
Φ	Taux volumique de fibres	
φ_{adv}	Flux de chaleur advectif	W.m^{-2}
φ_{cond}	Flux de chaleur par conduction	W.m^{-2}
Φ_m	Compacité maximale d'un renfort	
ϵ	Facteur de séparation des échelles	

Indices et exposants

C	Relatif au modèle de Corey
CW	Relatif au modèle de Charles & Wilson
f	Phase fluide
LN	Relatif au modèle de Lewis et Nielsen
nw	Phase non mouillante
s	Phase solide
VG	Relatif au modèle de Van Genuchten
w	Phase mouillante
x, y, z	Directions spatiales

CHAPITRE I

Introduction

AUJOURD’HUI, les industries du transport, en particulier les industries automobile et aéronautique, font face plus que jamais à une problématique d’économie d’énergie, qui passe nécessairement par un allègement des structures. Dans ce contexte, le secteur des matériaux composites a bénéficié au cours de ces dernières années d’une croissance rapide et régulière, soutenue par la diversité des applications et l’exceptionnel compromis masse/performance que ces matériaux présentent.

La réduction de la masse des pièces de structure est en effet un enjeu essentiel. A titre d’exemple, le tableau suivant présente la somme que les industriels sont prêts à dépenser pour atteindre un gain de 1kg sur leurs pièces.

Type d’industrie	Somme à dépenser pour gagner 1kg
Aérospatiale	100 000 €/kg
Aéronautique	1 000 €/kg
Automobile	1-5 €/kg

Tableau 1 : Enjeux économiques sur le gain de masse, d’après Bentoumi [1].

Au sein de cette catégorie de matériaux figurent les composites à matrice thermoplastique, qui suscitent un intérêt plus fort encore, en raison de leurs nombreux avantages sur les thermodurcissables. Même s’ils ne représentaient que 37% des volumes de composites sur le marché en 2009, leur croissance dépasse les 10% par an [2,3]. La perspective de réduction des temps de cycle, leur soudabilité, leur résilience, ou encore l’hypothèse de leur recyclabilité en font en effet des candidats potentiels pour des pièces de structure à haute valeur ajoutée.

Toutefois, leur très forte viscosité à l’état fondu ne permet pas d’imprégner de manière traditionnelle des renforts à fibres longues. Jusqu’à présent, les procédés d’injection classiques de type LCM (Liquid Composite Molding) excluaient donc l’emploi de matrices thermoplastiques. Les travaux de cette thèse s’inscrivent dans le cadre d’un programme de recherche de l’Agence Nationale de la Recherche (ANR) regroupant plusieurs partenaires industriels et académiques (voir Figure I- 1), visant à développer la mise en forme des composites thermoplastiques par le procédé de « moulage par transfert de résine » (RTM).

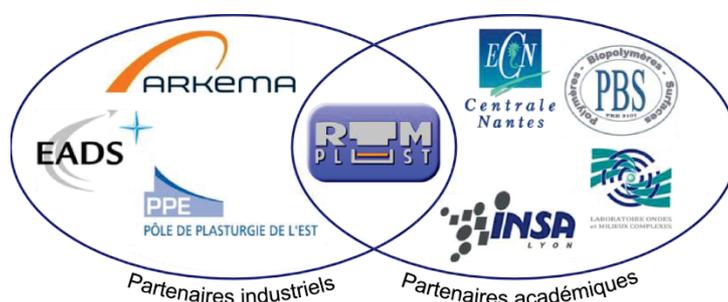


Figure I- 1 : Partenaires du programme ANR RTM-Plast

La qualité des pièces produites en LCM dépend essentiellement de la maîtrise des phases d’injection et de consolidation, pendant lesquelles le renfort est imprégné par une résine, qui polymérise et éventuellement cristallise dans le moule. En raison des forts couplages existant entre ces phénomènes physico-chimiques et la thermique, il est primordial de décrire finement les transferts de chaleur dès

l'imprégnation pour connaître l'histoire thermique du matériau, et par conséquent pour produire des pièces possédant des propriétés satisfaisantes.

Lors de la phase d'imprégnation, l'hétérogénéité des renforts utilisés en LCM induit la formation de bulles d'air, et donc d'une zone insaturée créée au voisinage du front, et qui s'étend sur plusieurs centimètres après celui-ci . On quantifie ce phénomène en étudiant le scalaire de saturation, qui est défini comme le taux de liquide dans le renfort à une position et un instant donnés. La prise en compte de la saturation est nécessaire afin de décrire finement les transferts de chaleur pendant l'injection. Dans ce contexte, l'objectif de cette étude est de pouvoir caractériser les transferts de chaleur expérimentalement et les exploiter comme un indicateur de la saturation. L'objectif est donc de décrire et de quantifier le profil de saturation d'un renfort fibreux dans les conditions d'un procédé de type LCM.

Ce manuscrit s'articule suivant quatre parties principales, dont la particularité est de comporter au début de chacune d'elles une revue bibliographique.

Après cette présente introduction, le deuxième chapitre est destiné à placer le contexte de l'étude, en présentant rapidement les matériaux composites, et plus précisément la mise en œuvre des composites thermoplastiques dans les procédés LCM. Nous définirons ensuite le cadre de l'étude en présentant les verrous scientifiques associés à la maîtrise de la thermique de l'injection.

Le troisième chapitre est un prérequis pour l'identification expérimentale de la saturation des matériaux modèles choisis. Il sera en effet consacré à la mesure et à la modélisation du tenseur de conductivité thermique effective du composite.

Dans la quatrième partie, le banc expérimental et sa métrologie seront décrits avec soin. De plus, on évoquera les procédures d'étalonnages qui ont été réalisées sur l'ensemble des capteurs. Pour finir, la modélisation numérique sera présentée, ainsi que les résultats de l'identification par le biais de la thermique.

Enfin, le dernier chapitre proposera une approche numérique diphasique, prenant en compte les perméabilités relatives des deux phases. Les premiers résultats ouvrent une nouvelle voie d'investigations en montrant la faisabilité de l'identification des perméabilités relatives par la thermique.

Références bibliographiques du chapitre I

- [1] R. Bentoumi, “Conférence à la Journée Nationale des Composites, Nantes,” *PSA Peugeot Citroën*, 2013.
- [2] H. Parton, “Characterisation of the in-situ polymerisation production process for continuous fibre reinforced thermoplastics,” 2006.
- [3] L. Berreur, B. De Maillard, and S. Nösperger, “L’industrie française des matériaux composites,” *Etude stratégique pour le compte de la DIGITIP*, 2002.

CHAPITRE II

Les procédés LCM et leurs verrous scientifiques

I	INTRODUCTION AUX MATERIAUX COMPOSITES A MATRICE ORGANIQUE	6
II	LES PROCEDES LCM TRADITIONNELS	7
II.1	DESCRIPTION DU PROCEDE	7
II.2	RENFORTS UTILISES EN LCM	8
II.2.1	<i>Types de fibres</i>	8
II.2.2	<i>Architecture du renfort</i>	9
II.3	MATRICES UTILISEES EN LCM	10
II.4	OUTILLAGES.....	10
II.5	VARIANTES DU PROCEDE.....	11
II.6	POROSITES ET VIDES.....	12
III	MISE EN ŒUVRE DES COMPOSITES THERMOPLASTIQUES.	13
III.1	INTERET DES COMPOSITES THERMOPLASTIQUES.....	13
III.2	POSITION DU PROBLEME.....	14
III.3	LE RTM REACTIF	16
III.3.1	<i>Principe</i>	16
III.3.2	<i>La polymérisation par ouverture de chaîne</i>	16
IV	LE PHENOMENE DE DISPERSION THERMIQUE	18
IV.1	DESCRIPTION DU PHENOMENE	18
IV.2	MODELES THEORIQUES DE DISPERSION THERMIQUE.....	20
IV.2.1	<i>Dispersion longitudinale</i>	20
IV.2.2	<i>Dispersion transverse</i>	20
IV.3	TRAVAUX EXPERIMENTAUX	21
IV.3.1	<i>Simulation de Monte Carlo</i>	21
IV.3.2	<i>Mesure de la dispersion longitudinale en stationnaire</i>	22
IV.3.3	<i>Mesure de la dispersion en régime transitoire</i>	23
	Excitation périodique.....	23
	Echelon de température	24
	Source plane linéique.....	24
IV.3.4	<i>Mesure de la dispersion transverse</i>	25
V	LA MAITRISE DE LA THERMIQUE DES PROCEDES LCM	26
VI	OBJECTIFS DE L'ETUDE	29
VII	CONCLUSION PARTIELLE	30

I Introduction aux matériaux composites à matrice organique

SOUVENT définis comme des matériaux hétérogènes constitués d'au moins deux composants non miscibles, les matériaux composites possèdent des propriétés qui s'associent afin de répondre à une fonction particulière. Ils sont composés de différentes phases nommées renfort et matrice, dont les natures peuvent être diverses. Des charges peuvent être également ajoutées. Néanmoins, nous nous restreindrons dans la suite au cas des matériaux composites organiques à renfort fibreux. Dans ce type de matériau, le renfort contribue à la majorité des propriétés mécaniques, tandis que la matrice sert de liant mécanique et protège les fibres de l'environnement.

Ces matériaux offrent un grand nombre d'avantages comparés aux autres matériaux traditionnels de structure, tels que par exemple :

- un excellent rapport résistance mécanique/masse, qui est très recherché notamment dans l'industrie aéronautique. La plupart de ces matériaux présentent une rigidité et une résistance comparable, voire supérieure à celle de l'acier, avec une masse volumique jusqu'à 5 fois moindre.
- une grande flexibilité de design des pièces,
- une résistance à la corrosion,
- une bonne résistance en fatigue,

Les matériaux composites trouvent la plupart de leurs applications dans l'industrie du transport (automobile et aéronautique notamment), dans l'aéronautique, mais également la défense et les sports et loisirs. Dans l'aéronautique, la part des composites employés pour la construction des grands porteurs a connu un essor considérable ces dernières années (Figure II- 1 et Figure II- 2), avec plus de 50 % pour le dernier-né des grands porteurs Airbus, l'A350.

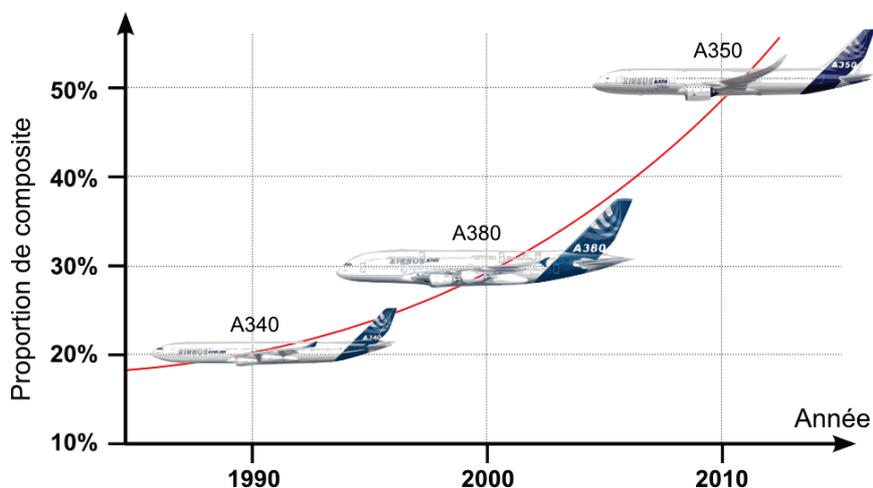


Figure II- 1 : Part croissante des matériaux composites dans les avions Airbus



Figure II- 2 : Part des matériaux composites dans l'Airbus A350 (Source : Airbus)

II Les procédés LCM traditionnels

II.1 Description du procédé

Les procédés LCM (Liquid Composite Molding) regroupent l'ensemble des technologies dans lesquelles un renfort fibreux est imprégné par une matrice liquide (le plus souvent aujourd'hui une résine thermodurcissable) dans un moule fermé, sous l'effet d'un gradient de pression. Ce dernier peut être appliqué par mise au vide, par la gravité, ou encore plus classiquement par une pompe. Les variantes à ce procédé sont nombreuses, comme nous allons le voir dans la suite.

Ces technologies sont nées du besoin grandissant d'outillages toujours plus grands et plus coûteux dans les domaines de l'injection et de la compression-moulage, ainsi que de la difficulté à produire des pièces de géométries très complexes dans ces deux procédés. En termes d'investissement et de coûts de production, le RTM (Resin Transfer Molding), ou moulage basse pression par injection d'une résine thermodurcissable sur un renfort fibreux, se situe dans la catégorie des procédés semi-industriels et représente un procédé intermédiaire entre les moulages manuels (moulage au contact, projection), et les réalisations mécanisées (compression). En effet, les outillages associés aux procédés LCM sont plus légers et moins coûteux que ceux destinés au moulage par compression, ce qui induit un investissement moins conséquent. De plus, il s'agit d'une technologie dite « en moule fermé », un critère dont l'importance est devenue aujourd'hui capitale, au regard des nouvelles normes drastiques régulant les émissions de composés organiques volatils (COV).

Un schéma d'un procédé typique de LCM est présenté sur la Figure II- 3.

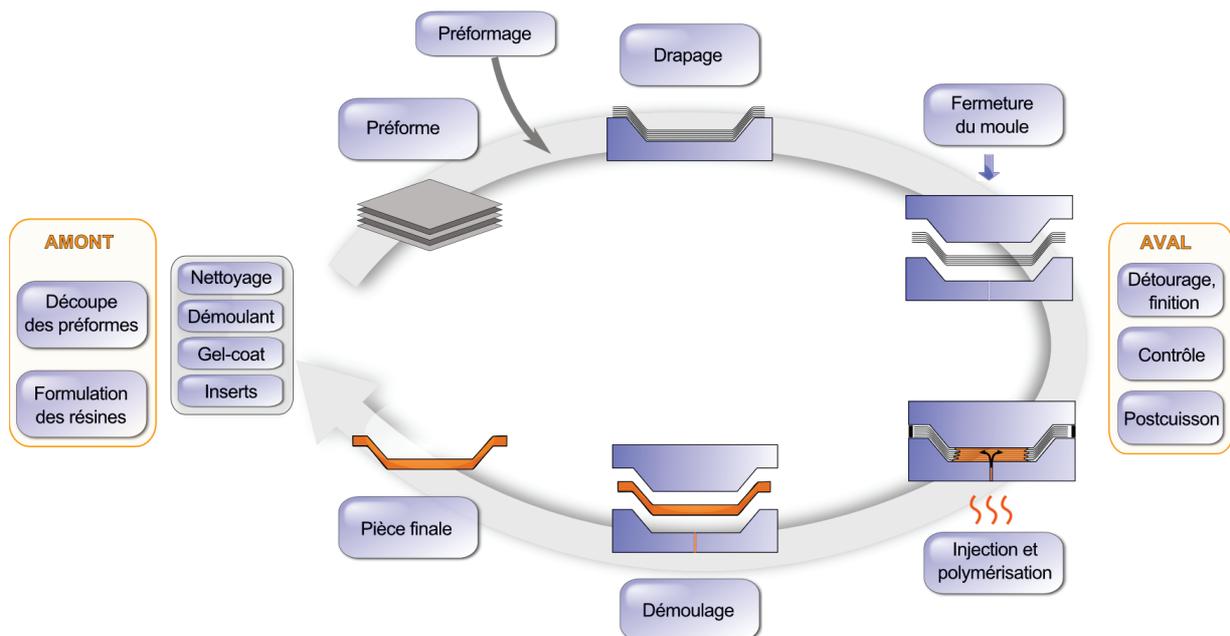


Figure II- 3 : Déroulement d'un procédé typique de RTM

Après découpe des renforts ou réalisation des préformes, le moule est préparé (nettoyage, démoulant, gel-coat, inserts éventuels). On dépose d'abord un démoulant puis un gel-coat de surface ($\sim 500 \text{ g/m}^2$). On vient draper les renforts puis fermer le moule hermétiquement. L'injection est ensuite réalisée sous pression modérée (en général inférieure à $0,8 \text{ MPa}$). L'excédent de résine sort et s'écoule par un évent, puis retenue dans un canal de rétention périphérique qui doit être situé au-dessus du point le plus haut de la pièce. Après polymérisation, le moule est ouvert et on procède au démoulage et à l'ébavurage de la pièce. Un nouveau cycle peut alors débuter.

Les principaux avantages des procédés de types LCM sont les suivants :

- Possibilité de produire des pièces de formes très complexes
- Bel aspect de surface des deux côtés de la pièce en comparaison avec le moulage au contact
- Procédé en moule fermé, donc moins de pertes matières, et pas d'émission de COV
- Précision et respect des cotes
- Reproductibilité
- Possibilité de contrôler la thermique de l'outillage

II.2 Renforts utilisés en LCM

II.2.1 Types de fibres

Gornet [4] répertorie les différents renforts existants au moyen de cette classification:

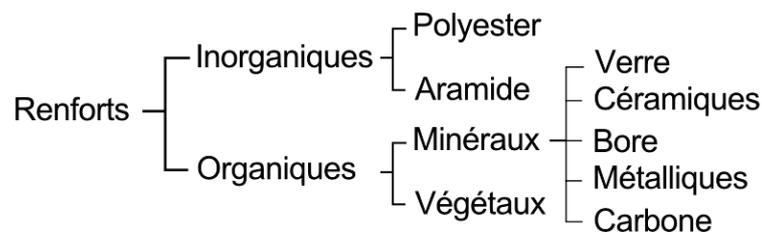


Figure II- 4 : Principaux types de fibres [4]

Comme on le voit sur la Figure II- 4, les renforts utilisés peuvent être de natures très diverses. Cependant, on peut distinguer trois familles de fibres que l'on rencontre le plus souvent :

-les fibres de carbone : La matière première utilisée pour fabriquer la fibre de carbone est appelée le précurseur. Environ 90 % des fibres de carbone produites sont fabriqués à partir de la pyrolyse du polyacrylonitrile (PAN). Les 10 % restants sont fabriqués à partir de rayonne ou de brai de pétrole. Tous ces matériaux sont des polymères organiques, caractérisés par de longues chaînes de molécules liées entre elles par des atomes de carbone.

-les fibres de verre : Il s'agit des fibres les plus employées dans l'industrie, en raison de leur coût modéré. Elles diffèrent notamment par leur composition chimique et l'ensimage qui est appliqué sur celles-ci.

-Les fibres d'aramide : plus connues sous le nom commercial de Kevlar, ces fibres inorganiques permettent l'élaboration de composites ayant des propriétés remarquables en fatigue, en usure, et en résistance aux chocs.

Enfin, on peut également citer les fibres naturelles, qui connaissent actuellement un essor conséquent. Il s'agit essentiellement de fibres végétales telles que les fibres de lin ou de chanvre.

II.2.2 Architecture du renfort

Les fibres sont généralement agencées de manière à former une architecture particulière. Pour former un pli, les fibres sont rassemblées en mèches de plusieurs milliers de fibres, et les mèches sont tissées entre elles permettant d'obtenir les propriétés visées. On peut classer les renforts de la manière suivante :

- Renforts aléatoires (mats): fibres réparties de manière aléatoire
- Renforts unidirectionnels (UD): il s'agit de fibres parallèles entre elles (cas du vrai UD), éventuellement rassemblées en mèches et liées par un fil de trame en coton (cas du quasi-UD)
- Renforts tissés 2D : Les mèches peuvent être tissées suivant une armure particulière (voir Figure II- 5), qui dépend du type d'entrecroisement des mèches.

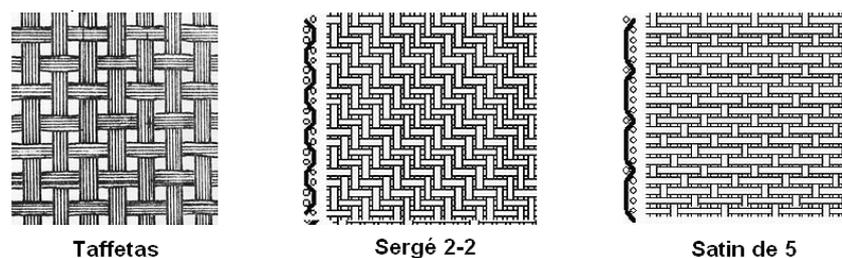


Figure II- 5 : Différentes armures de renfort

- Renforts 3D : Pour certaines applications où l'on recherche une résistance au délaminage, des mèches peuvent être tissées, tressées ou encore tricotées.

II.3 Matrices utilisées en LCM

La grande majorité des composites structuraux font appel à des résines thermodurcissables. Elles sont liquides et réticulent sous l'action de la chaleur, d'un catalyseur et d'un durcisseur. La transformation est irréversible et forme un réseau moléculaire tridimensionnel réticulé qui est infusible. Un inventaire assez exhaustif des résines thermodurcissables disponibles est fait par Gutowski [5]. Nous ne nous attarderons pas à toutes les lister, mais citons tout de même les plus utilisées :

- Les résines 'polyester insaturés' : il s'agit de copolymères, qui occupent une position dominante par leur tonnage.
- Les résines époxydes : malgré un prix plus élevé, leurs excellentes propriétés d'adhésivité les rendent associées aux applications hautes performances.
- Les résines vinylester : généralement solubilisées dans un solvant copolymérisable, leur mise en œuvre les rapproche des époxy.

Des avancées récentes dans le domaine de la chimie des polymères ont permis d'adapter les procédés LCM aux résines thermoplastiques. Ces résines sont des polymères à chaînes linéaires ou ramifiées, qui sont donc fusibles et solubles. Cependant, elles présentent une viscosité très importante à l'état fondu. Si cette forte viscosité n'est pas un problème pour les composites à fibres courtes, l'imprégnation d'un renfort constitué de fibres longues avec un système réactif classique est une véritable gageure. Toutefois, plusieurs solutions existent et permettent de produire des pièces thermoplastiques à fibres longues. Celles-ci seront détaillées dans la partie suivante consacrée aux composites thermoplastiques.

II.4 Outillages

Le moule possède deux fonctions principales : la mise en forme de la pièce et la régulation de sa température. Le processus de choix d'un moule dépend de nombreux critères, tels que :

- la gamme de température associée à la résine utilisée
- l'inertie thermique pour le temps de cycle choisi
- La série, ou le nombre de pièces à produire

-La géométrie et la taille de la pièce à produire.

Les outillages composites sont très largement réalisés en béton de résine époxyde, polyester, ou encore vinylester, et recouverts d'une fine couche de gel-coat garantissant un état de surface optimal. Ils sont destinés à des faibles à moyennes séries et leur durée de vie n'excède pas 5000 pièces. Les outillages métalliques sont plus onéreux mais permettent une régulation thermique plus fine, donc une plus grande cadence, et sont adaptés à des grandes séries. Le tableau 1 rassemble les principaux types d'outillages utilisés en LCM et leurs propriétés respectives.

Famille	Nature	Intérêts	Limites	Série	Indice de prix
GFRP	Verre-Polyester	Peu onéreux Réalisation rapide	-Faible durée de vie -Surface fragile -Faible diffusivité thermique (pas de régulation) -Température limitée (70°C)	300-1500	1
	Verre-époxy	Tenue en température	-Faible durée de vie	500-5000	1.5
Assemblages	Peaux électroformées/résine	Moyenne série	-Difficile à modifier	50 000-100000	5
Alliages d'aluminium	Alliage aluminium usiné	Grande gamme de pression et de température	-Coût élevé -Dimensions modestes	>20 000	8
Alliages d'acier	Acier allié	Grande diffusivité thermique (régulation)	-Coût élevé -Délais de livraison	>100 000	20

Tableau 1 : Types d'outillages adaptés au LCM et leurs propriétés

II.5 Variantes du procédé

Les variantes du procédé RTM sont nombreuses, et ont été décrites avec précision par Binétruy *et al.*[6]. Les caractéristiques les plus courantes sont détaillées dans la suite.

- RTM light (ou RTM Eco)

Il s'agit d'un procédé économique et particulièrement adapté à la production de petites et moyennes séries. L'outillage est constitué d'un moule classique et d'un contre-moule semi-flexible dans lequel la résine est coulée directement et aspirée via un pot de récupération. La mise en œuvre est aisée et l'investissement faible, mais cette option n'offre qu'une cadence limitée, une faible gamme de température, et aucune possibilité de thermorégulation.

- Reaction Injection Moulding (RIM)

On utilise une résine réactive bi-composant, dont le simple contact provoque une expansion volumique qui remplit le moule (mousse polyuréthane par exemple).

- Infusion (LRI : Liquid Resin Infusion), ou RFI (Resin Film Infusion)

Le procédé d'infusion est une variante du procédé RTM dans le sens où le contre-moule utilisé est flexible. L'imprégnation est rendue plus efficace et plus homogène en aspirant la résine sur son renfort en créant une dépression entre un moule rigide et une membrane ou film souple. La mise sous vide permet à la fois le compactage et l'imprégnation de la résine. Dans la pratique, pour réaliser des pièces techniques, on utilise aussi généralement un film de drainage de très grande perméabilité qui permet l'écoulement rapide de la résine à la surface de la préforme, puis l'imprégnation dans l'épaisseur du renfort. L'intérêt par rapport au RTM réside dans la réalisation de petites séries avec un investissement modéré, et la possibilité de réaliser de très grandes pièces. Les niveaux de porosités sur les pièces finales se situent en général légèrement en dessous de ceux obtenus en RTM. En revanche, ce procédé est non-automatisable, la durée de préparation et de positionnement est longue, et les pertes de consommables sont importantes.

II.6 Porosités et vides

Dans un milieu poreux, la porosité, notée ϵ , est définie comme la fraction volumique occupée par les espaces vides, c'est-à-dire le volume total de vides divisé par le volume total du matériau considéré. Ces pores sont généralement connectés les uns aux autres (on parle alors de porosité interconnectée), connectés à un seul autre pore (porosité dite en cul-de-sac), ou non-connectés (porosité isolée). L'écoulement d'un fluide s'effectue à travers les porosités interconnectées, dont la fraction volumique est appelée porosité effective. Dans les milieux poreux non consolidés, tels que les renforts fibreux utilisés dans les procédés LCM, la porosité effective et la porosité sont égales. Dépendamment du milieu poreux étudié, les structures des pores et leur distribution de taille peuvent être très variables. La non uniformité de leurs tailles amène à considérer une distribution statistique de valeurs moyennées sur un élément de volume caractéristique.

En raison de la nature hétérogène des renforts textiles utilisés en LCM, qui sont constitués de mèches elles-mêmes constituées de fibres, on observe une porosité dite à double échelle. On distingue ainsi, en étudiant les tailles de porosité, une distribution présentant deux pics correspondant à deux volumes majoritaires. On retrouve d'une part une « micro-porosité », d'un diamètre équivalent moyen de quelques micromètres, qui concorde avec les espaces situés entre les fibres au cœur d'une mèche (intra-mèche), et d'autre part une « macro-porosité », dont les dimensions avoisinent le millimètre et qui correspond à l'espace poral inter-mèches (Figure II- 6).

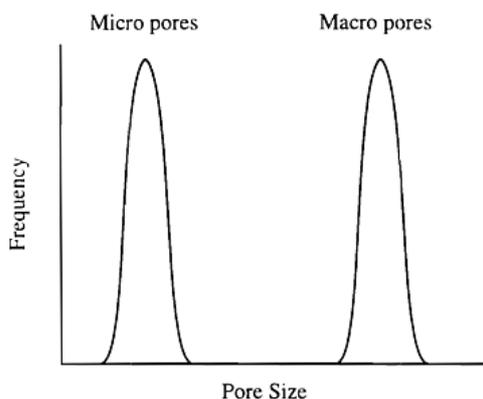


Figure II- 6 : Distribution de la taille des pores dans un renfort fibreux [7]

La finalité des procédés de type LCM consiste à obtenir une pièce de qualité en remplissant de façon optimale le milieu poreux constitué par la préforme sèche. Lors de cette étape, des défauts sont créés, dont une grande partie restera présente dans la pièce réticulée. Ceux-ci sont le plus souvent des bulles qui sont, dans le domaine des composites, couramment désignées par le terme « vide », même s'il s'agit bien évidemment de cavités contenant du gaz. Dans la suite de ce document, on s'attachera à conserver cette terminologie en distinguant de manière claire les notions de « porosité » et de « vide ». Ces vides sont de plusieurs types et ont des origines différentes, comme nous le verrons dans la suite.

III Mise en œuvre des composites thermoplastiques.

III.1 Intérêt des composites thermoplastiques

Les matériaux composites à matrice thermoplastique (TP) sont devenus depuis quelques années particulièrement attractifs dans de nombreux secteurs industriels de pointe tels que l'aérospatiale, l'automobile, et l'aéronautique. Ils offrent en effet un certain nombre d'avantages par rapport aux composites thermodurcissables :

- Meilleures caractéristiques techniques :
 - Meilleure stabilité thermique
 - Grande résilience (résistance aux chocs)
 - Bonne tenue chimique
 - Soudabilité
- Amélioration des conditions d'utilisation :
 - Conditions de stockage et de transport moins contraignantes
 - Suppression de la notion de durée de vie des semi-produits
 - Élimination des COV
- Meilleur respect de l'environnement :

- Utilisation de solvants moins toxiques et en plus faibles quantités
- Potentialité de la recyclabilité

Pour toutes ces raisons, de nombreux travaux visant à produire des pièces composites thermoplastiques à fibres continues ont été recensés ces dernières années. Même si les composites thermoplastiques ne représentent que 37 % du marché en 2009 [5,6], la croissance de celui-ci est largement supérieure à celle des thermodurcissables (plus de 10 % par an).

III.2 Position du problème

Comme nous l'avons déjà évoqué, le problème majeur des thermoplastiques est leur forte viscosité à l'état fondu. Comme on peut le voir sur la Figure II- 7, la viscosité des thermoplastiques est de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle d'une résine thermodurcissable. Par conséquent, l'injection d'une telle résine dans une préforme de faible perméabilité s'avère irréalisable en raison de la pression considérable qu'elle nécessiterait, et du déplacement possible du renfort sous l'effort de l'écoulement.

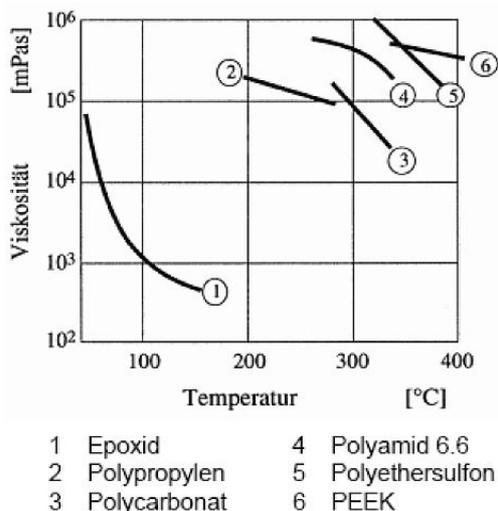


Figure II- 7 : Comparaison de la viscosité entre une résine époxy et plusieurs thermoplastiques [8]

Afin de contourner ce problème de forte viscosité, trois voies sont envisageables.

La première technique consiste à contourner le problème en réduisant la « distance » que la résine doit parcourir. Concrètement, il s'agit de mélanger intimement la matrice et le renfort avant le début du procédé. Ce processus implique de passer par des semi-produits assez onéreux. Trois techniques sont généralement employées [9] :

- Empilement de films thermoplastiques : dans cette technique, on réalise un empilement répété d'une couche de fibre et d'une fine feuille de polymère thermoplastique. Sous l'action conjointe de la pression et de la chaleur, le polymère imprègne les mèches dans le sens

transverse. Ce procédé est similaire au thermoformage pour les thermodurcissables, à la différence près que la matrice n'a pas réagi. Cette méthode est simple et bon marché, mais reste assez limitée dès lors que les pièces formées deviennent complexes.

- Mèches hybrides : cette méthode permettant de mêler intimement matrice et fibres implique la torsion de fibres thermoplastiques autour des fibres du renfort. L'étape de consolidation est obtenue par compaction et chauffage. Un exemple de comélage est présenté sur la Figure II- 8. Notons qu'il existe aussi du comélage dans lequel les fibres thermoplastiques sont réparties dans une mèche de renfort.

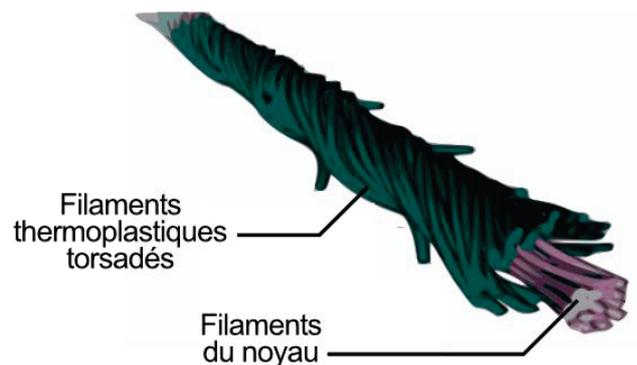


Figure II- 8 : Exemple de fibres coméllées.

- Imprégnation de poudres : Les fibres sont préalablement enduites d'une pulvérisation de particules thermoplastiques qui restent adhérentes grâce à l'électricité statique. Une phase de chauffage permet ensuite de fritter le matériau afin d'obtenir la pièce finale. Cette technique est généralement caractérisée par un important taux de vide résiduel.

La deuxième méthode pour rendre possible l'élaboration de composites thermoplastiques à fibres longues est de réduire directement la viscosité. On peut citer trois grandes méthodes :

- L'imprégnation de solvants : cette technique nécessite de dissoudre le polymère dans un solvant, dans le but de réduire sa viscosité. Toutefois, il existe de nombreux inconvénients. En premier lieu, les polymères semi-cristallins sont très difficiles à dissoudre et nécessitent l'emploi de solvants organiques très toxiques. Par conséquent, cette méthode est plutôt employée avec les polymères amorphes [10]. Par ailleurs, il est très difficile de se débarrasser de toutes les traces de solvant dans la pièce, qui peuvent être à l'origine de la création de vides.
- Certaines avancées récentes ont permis de synthétiser des polymères thermoplastiques basse viscosité. Cette propriété est atteinte par modification de la structure macromoléculaire, et permet d'abaisser la viscosité à environ $10 Pa.s$. Cette approche est développée notamment par la société Solvay.
- La polymérisation *in-situ* : l'idée est d'injecter un mélange de précurseurs chimiques de faible viscosité qui va imprégner aisément le renfort. A la manière d'une résine thermodurcissable, le mélange va ensuite réagir *in-situ* pour former la matrice définitive. Cette méthode sera décrite en détails dans la suite de ce chapitre. Il s'agit au passage de l'approche adoptée dans le cadre du programme de recherche « RTM-Plast. »

Enfin, on peut également imaginer une troisième voie qui consisterait à combiner les avantages des deux premières, c'est-à-dire créer des semi-produits dont la viscosité serait la plus faible possible.

III.3 Le RTM réactif

III.3.1 Principe

Ce procédé consiste à imprégner le renfort avec un précurseur constitué de monomères ou d'oligomères de très faible viscosité. A la suite de l'injection, la polymérisation est réalisée *in situ*, et peut être initiée par la chaleur ou un rayonnement UV, et peut nécessiter l'ajout d'un système catalytique, qui est mélangé au précurseur avant l'imprégnation. En raison de leur faible poids moléculaire, ces précurseurs ont des viscosités très faibles à l'état fondu, ce qui permet de remplir la cavité moulante en utilisant de faibles pressions.

Van Rijswijk *et al.*[11] et Parton [4,10] rappellent les prérequis d'un tel type de polymérisation :

- On doit pouvoir former un polymère linéaire de haut poids moléculaire
- Le taux de conversion doit être maximal
- La réaction chimique ne doit pas générer de sous-produits.
- La viscosité de la matrice ne doit pas dépasser 10 Pa.s pendant la phase d'imprégnation
- Après imprégnation, la matrice doit pouvoir se solidifier chimiquement ou physiquement en un temps relativement court.
- La matrice obtenue doit posséder de bonnes propriétés mécaniques et conférer une bonne stabilité à la pièce composite.

De plus, lorsqu'on s'intéresse à des polymères semi-cristallins, le cycle de température de mise en œuvre doit être choisi avec beaucoup de soin, de manière à ce que la polymérisation et la cristallisation puissent se dérouler de façon optimale. Si la température est trop basse, le polymère formé risque de cristalliser trop rapidement, et de piéger des monomères dans les phases cristallines, bloquant leur transformation. Au contraire, si la température est trop élevée, le degré final de cristallinité restera faible, ce qui sera préjudiciable pour les propriétés mécaniques finales de la pièce.

III.3.2 La polymérisation par ouverture de chaîne

La polymérisation la plus adaptée aux contraintes que l'on vient de citer est la polymérisation par ouverture de cycles notée ROP (Ring-opening polymerization). Comme son nom l'indique, ce mécanisme réactionnel consiste à casser des molécules cycliques sous l'action d'un amorceur. Ces cycles sont des monomères ou des oligomères (constitués de 2 à 10 unités) du polymère à synthétiser. Après ouverture des cycles, les extrémités fonctionnelles interagissent afin de former une chaîne macromoléculaire linéaire (voir Figure II- 9).

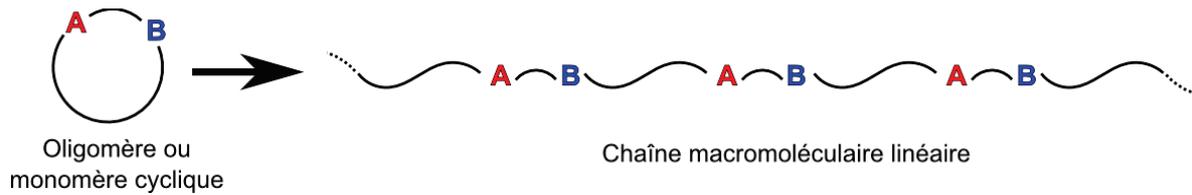


Figure II- 9 : Schéma de principe d'une polymérisation par ouverture de cycle.

La plupart des polymères usuels, tels que le PMMA, le PU ou encore le PA-6 possèdent leurs systèmes réactifs adaptés aux ROP et éprouvés [11]. En revanche, la mise au point de précurseurs cycliques pour les polymères hautes performances s'avère plus problématique, en raison de leur propriétés inhérentes. En effet, les thermoplastiques hautes performances possèdent une chaîne carbonée très rigide qu'il est difficile de déformer pour produire des précurseurs cycliques. Ceux-ci doivent nécessairement être plus grands, et doivent donc contenir plus de monomères. Les précurseurs cycliques associés aux thermoplastiques hautes performances possèdent donc un poids moléculaire plus élevé, ce qui amène un certain nombre de contraintes techniques :

- Les précurseurs sont constitués d'un mélange d'oligomères de tailles variables, et non plus de cycles de tailles égales. Cette dispersion de taille entraîne un point de fusion diffus, et un taux de cristallinité variable.
- La polymérisation doit être effectuée à haute température pour deux raisons. Premièrement, la température doit être supérieure au point de fusion de tous les oligomères. Deuxièmement, la viscosité de la chaîne macromoléculaire doit rester suffisamment basse pour garantir une bonne mobilité des chaînes.

L'utilisation de précurseurs possède plusieurs avantages qui facilitent le bon déroulement du procédé. Au point de vue rhéologique, la viscosité du mélange à injecter est réduite de plusieurs ordres de grandeur, comme on le voit sur la Figure II- 10 extraite de [11]. Sur le plan de la thermique, les températures de mise en œuvre sont également réduites de plusieurs dizaines de degrés (Tableau 2). Cette différence correspond à la différence des points de fusion entre le polymère classique et le système réactif composé d'un mélange d'oligomères.

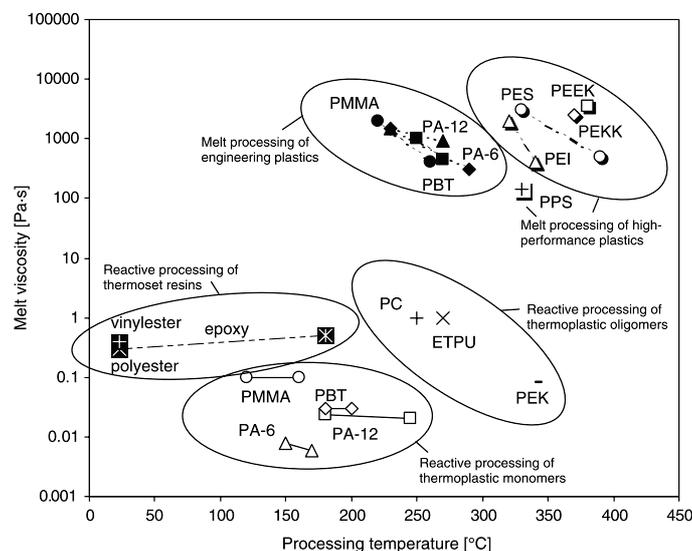


Figure II- 10 : Comparaison des viscosités de différentes résines polymères pour la mise en forme classique ou par moulage réactif [11]

Matrices thermoplastiques	Température de mise en oeuvre (°C)		
	Mise en forme en fondu	Système réactif	Reduction
PA-6	230–290	140–160	70–150
PA-12	230–270	180–245	0–90
PBT	250–270	180–200	50–90
PMMA	220–260	120–160	60–140
PC	265–360	250	15–110
PET	265–325	250–325	0–15
PES	330–390	300	30–90
PPS	330	300	30
PEEK	380–390	350	30–40

Tableau 2 : Comparaison des températures pour la mise en forme en fondu et pour le procédé réactif.

La suite de ce chapitre est consacrée à présenter les principaux verrous scientifiques liés à la phase d’injection dans les procédés LCM, et en premier lieu le phénomène de dispersion thermique, qui fait d’ailleurs l’objet de la partie suivante.

IV Le phénomène de dispersion thermique

IV.1 Description du phénomène

Afin de faciliter la compréhension de ce phénomène, il est courant de faire l’analogie avec celui de dispersion massique. Le rôle de la température T et de la diffusivité thermique $a = \lambda / \rho C_p$ sont joués respectivement par la concentration d’un traceur et son coefficient de diffusion moléculaire D_f . La seule différence est que dans le transfert de masse, la phase solide ne participe pas aux échanges, contrairement au transfert de chaleur. Le transfert de masse représente donc un cas particulier dans lequel la conductivité de la phase solide est nulle.

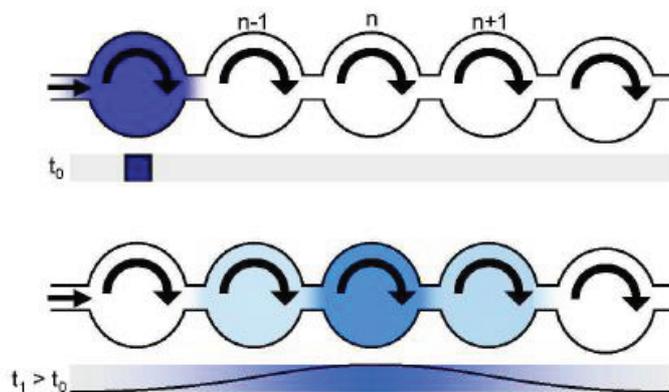


Figure II- 11 : Dispersion massique longitudinale dans une cascade de mélangeurs.

Considérons à titre d'exemple une cascade de mélangeurs (Figure II- 11), un cas simplifié étudié par Kramers et Albeda [13], dans lequel chaque pore du milieu poreux est assimilé à un mélangeur. Le modèle qu'ils développent décrit la dispersion massique longitudinale dans un écoulement unidimensionnel. Si on considère un grand nombre de mélangeurs de longueur Δx et de volume V , le bilan de masse s'écrit :

$$V \frac{\partial C_n}{\partial t} = -\frac{uV}{\Delta x} (C_n - C_{n-1}) \quad \text{Eq. (2.1)}$$

Où C_n est la concentration dans le mélangeur n (kg.m^{-3}), et u est la vitesse moyenne du fluide (m.s^{-1}).

Le transport macroscopique est régi par une équation classique de convection-diffusion, telle que :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{f_x} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} \quad \text{Eq. (2.2)}$$

La discrétisation de cette équation amène

$$\frac{\partial C_n}{\partial t} = D_{f_x} \frac{(C_{n+1} - 2C_n + C_{n-1}))}{\Delta x^2} - u \frac{(C_{n+1} - C_{n-1}))}{2\Delta x} \quad \text{Eq. (2.3)}$$

On s'aperçoit que l'équation (2.3) est équivalente à l'équation (2.1) si on définit D_{f_x} comme étant la diffusivité effective et valant :

$$D_{f_x} = \frac{u\Delta x}{2} \quad \text{Eq. (2.4)}$$

Ce modèle simple a longtemps servi à décrire les transferts de masse dans les milieux poreux réels. Le coefficient de dispersion longitudinale que l'on a défini dépend de la vitesse et est souvent décrit en fonction du nombre de Péclet, un nombre adimensionnel qui représente le rapport des temps caractéristiques de diffusion et de convection à l'échelle des pores.

$$P_{e_{massique}} = \frac{ud}{D_f} = \frac{\tau_{diffusion}}{\tau_{convection}} \quad \text{Eq. (2.5)}$$

d est le diamètre des pores (m) , u la vitesse de Darcy (m.s^{-1}) et D_f le coefficient de diffusion moléculaire du fluide ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$).

L'analogie avec la thermique est immédiate, puisque que le nombre de Péclet thermique est également défini, en remplaçant la diffusivité massique du fluide par la diffusivité thermique a

$$P_{e_{thermique}} = \frac{ud}{a} \quad \text{Eq. (2.6)}$$

La dispersion thermique est un phénomène local dû à l'écoulement, qui apporte une modification globale des propriétés thermiques du milieu poreux. Concrètement, lorsqu'il existe des fluctuations locales du champ de température et du champ de vitesse à l'échelle du pore, la conductivité thermique

effective est amplifiée et on constate une augmentation apparente des transferts de chaleur grâce à l'écoulement.

La suite de cette partie va s'attacher à présenter quelques modèles théoriques prédisant les coefficients de dispersion thermique, et les principales démarches qui permettent de les quantifier expérimentalement. La quasi-intégralité des travaux dans ce domaine a été développée pour l'industrie chimique, c'est la raison pour laquelle la plupart des résultats présentés dans la suite considèrent des lits fixes de particules sphériques, et ne sont pas directement adaptables au cas des renforts fibreux.

IV.2 Modèles théoriques de dispersion thermique

IV.2.1 Dispersion longitudinale

En ce qui concerne la dispersion longitudinale, les travaux de Tsotsas [14] font référence et sont les plus utilisés. Il propose la corrélation suivante, issue d'une analogie avec la dispersion massique.

$$\frac{\lambda_x}{\lambda_f} = \left[\frac{\lambda_{eq}}{\lambda_f} + \frac{1}{2} P_e \right] + \left[\frac{\kappa^2}{(1 + \kappa)^2} \frac{1}{Nu a_v d} \right] P_e^2 + \left[\frac{\kappa^2}{(1 + \kappa)^2} \frac{1}{60(1 - \varepsilon) \frac{\lambda_s}{\lambda_f}} \right] P_e^2 \quad \text{Eq. (2.7)}$$

$$\text{avec } \kappa = \frac{(1 - \varepsilon)(\rho C p)_s}{\varepsilon(\rho C p)_f} \quad \text{Eq. (2.8)}$$

(Nu est le nombre Nusselt, a_v la surface spécifique du renfort ou des particules.)

Le premier terme correspond à la somme de la conductivité effective et de la dispersion dans le fluide, le second terme prend en compte le transfert entre les deux phases, et le dernier la conduction dans les particules. Certains auteurs [15] simplifient cette équation en ne considérant que les ordres du premier ordre en Péclet :

$$\frac{\lambda_x}{\lambda_f} \sim \left[\frac{\lambda_{eq}}{\lambda_f} + \frac{1}{2} P_e \right] \quad \text{Eq. (2.9)}$$

IV.2.2 Dispersion transverse

Les chercheurs de la communauté du génie des procédés s'accordent sur deux modèles décrivant la dispersion thermique transverse, celui développé par Bauer et Schlünder [16], et sa variante selon Kaviany [17]. Dans les deux cas, l'expression fait apparaître un terme purement conductif et un autre prenant en compte l'influence de l'hydrodynamique.

$$\frac{\lambda_y}{\lambda_f} = \frac{\lambda_{eq}}{\lambda_f} + A_y P_e \quad \text{Eq. (2.10)}$$

$$\text{avec } A_y = \frac{1}{7} \text{ pour des particules sphériques} \quad \text{Eq. (2.11)}$$

où λ_f est la conductivité thermique du fluide, λ_{eq} la conductivité thermique effective en statique, et Pe le nombre de Péclet.

La différence ne repose que sur la valeur de la constante A_y , qui dépend de la géométrie du renfort et qui est sujet à controverse. Kaviany propose une équation similaire en prenant $A_y = 0,1$.

IV.3 Travaux expérimentaux

Dans cette partie, on traitera les approches expérimentales qui ont tenté de mesurer les coefficients de dispersion.

IV.3.1 Simulation de Monte Carlo

Da Silveira [18] développe une approche originale dans laquelle il détermine la dispersion thermique à l'aide d'un traceur thermique constitué de particules de masse nulle, mais avec une certaine quantité d'énergie que nous appelons thermions. Il effectue un lancer simultané d'un très grand nombre de ces particules dans un milieu périodique désordonné (voir Figure II- 12). Le déplacement convectif et diffusif des thermions est simulé numériquement. Enfin, la distribution de particules est calculée afin d'obtenir le coefficient de dispersion.

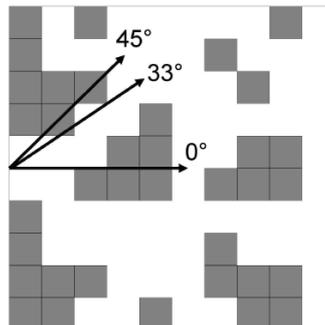


Figure II- 12 : Cellule unitaire représentant un milieu périodique désordonné utilisée par Da Silveira [18]

Les coefficients de dispersion thermiques estimés sont représentés sur la Figure II- 13 en fonction du nombre de Péclet. On constate que la composante longitudinale varie en fonction de Pe avec un exposant compris entre 1,51 et 1,84. Le coefficient transversal quant à lui subit une variation bien moindre.

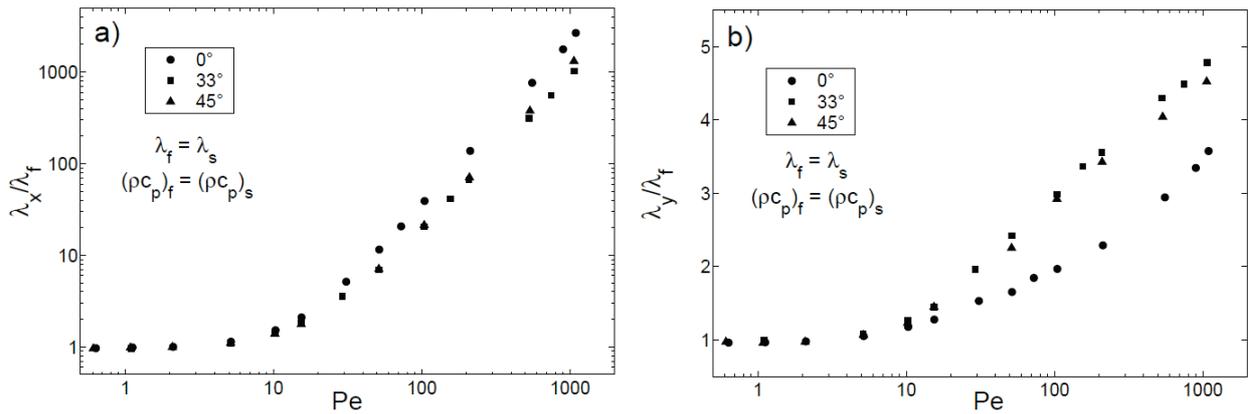


Figure II- 13 : Résultats des simulations de Monte Carlo avec des thermions pour la conductivité effective selon x (à gauche) et selon y (à droite)

IV.3.2 Mesure de la dispersion longitudinale en stationnaire

Cette approche permet de déterminer le coefficient de dispersion longitudinale en réalisant une mesure stationnaire. L'idée consiste à venir exciter thermiquement le milieu poreux à sa sortie pendant l'écoulement. Yagi *et al.* [19] ont été parmi les premiers à déterminer les conductivités thermiques axiales d'un lit granulaire. Leurs mesures du coefficient de dispersion thermique axial ont été réalisées dans un milieu granulaire de billes de verre de 1,6 mm de diamètre confiné dans une enceinte constituée de deux tubes de verre qu'ils considéraient adiabatiques. Le principe de cette méthode est représenté sur la Figure II- 14.

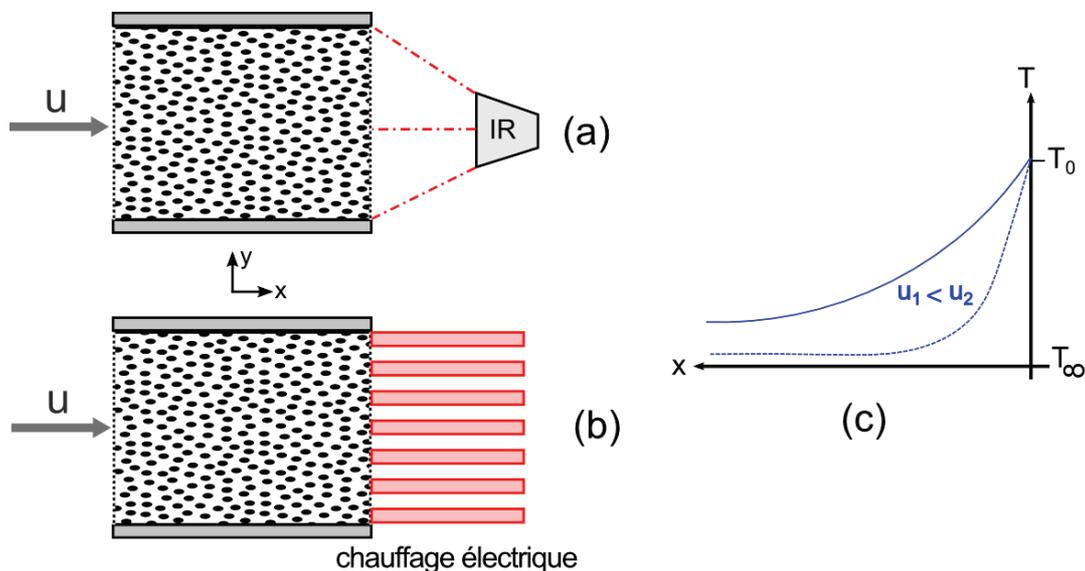


Figure II- 14 : Principe de mesure du coefficient de dispersion longitudinale en régime stationnaire avec une excitation thermique par infra-rouge (a) ou par chauffage électrique (b). La figure (c) représente le profil de température pour deux vitesses différentes.

Le profil de température stationnaire est mesuré à l'aide de nombreux thermocouples positionnés dans l'axe d'écoulement à différentes abscisses, et proches de la sortie. Notons que cette méthode n'est réalisable que pour des nombres de Péclet faibles. Dans le cas contraire, la zone chauffée est trop petite et la mesure s'avère imprécise. La dispersion thermique est quantifiée par comparaison des champs de température expérimentaux et numériques [20], en utilisant le modèle à une température dont l'équation s'écrit:

$$\lambda_x \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} - \varepsilon(\rho C p)_f u_f \frac{\partial T}{\partial x} - P_t = 0 \quad \text{Eq. (2.12)}$$

où P_t est un terme tenant compte des pertes transversales.

L'inconvénient de cette méthode est que la zone de mesure est petite, et qu'elle se situe en sortie du milieu poreux, là où les effets de bord sont importants.

IV.3.3 Mesure de la dispersion en régime transitoire

Dans les exemples présentés dans la suite, on suppose toujours que l'écoulement est établi, ce qui signifie que la saturation n'est pas prise en compte. Les transferts de chaleur quant à eux sont transitoires.

Excitation périodique

Le principe de la méthode consiste à exciter thermiquement cette fois l'entrée du milieu poreux, et de mesurer la réponse thermique du matériau à la sortie (voir Figure II- 15). Cette approche a été développée initialement par Gunn *et al.*[21], qui appliquent un chauffage électrique périodique sur la face d'entrée du milieu poreux. Le rapport d'amplitude entre la température imposée en entrée et la température en sortie est exploité pour déterminer le coefficient de dispersion longitudinal.

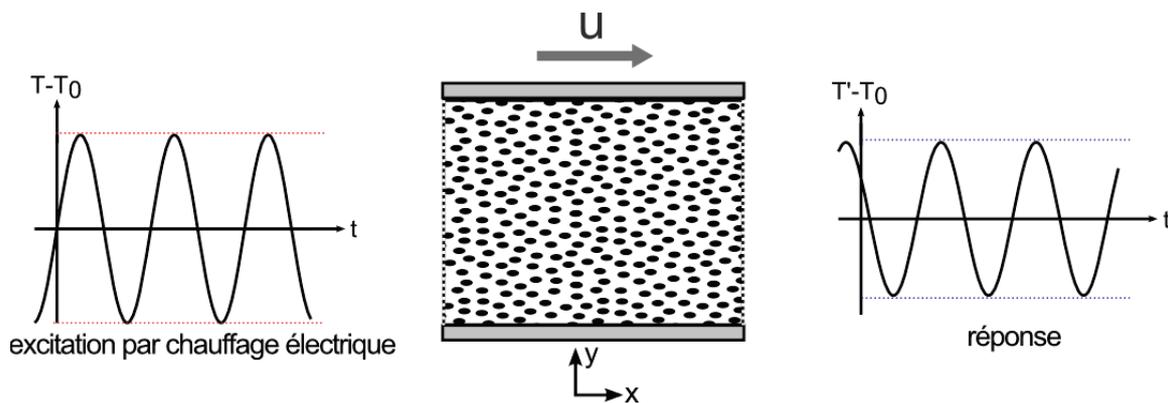


Figure II- 15 : Méthode transitoire développée par Gunn [21]. L'excitation est imposée sur la face gauche et la réponse thermique est mesurée sur la face de droite.

L'inconvénient de cette méthode est une assez faible sensibilité du signal aux paramètres à estimer. Les résultats permettent donc simplement de constater des tendances.

Echelon de température

Cette approche est légèrement différente de la précédente, puisqu'elle consiste à mesurer la réponse à un échelon temporel de température. (voir Figure II- 16). Expérimentalement, s'il est assez aisé d'imposer un flux thermique, il est très difficile d'imposer un échelon de température. Pour contourner ce problème technique, on utilise en général deux réservoirs d'alimentation à deux températures différentes, dont l'utilisation est alternée.

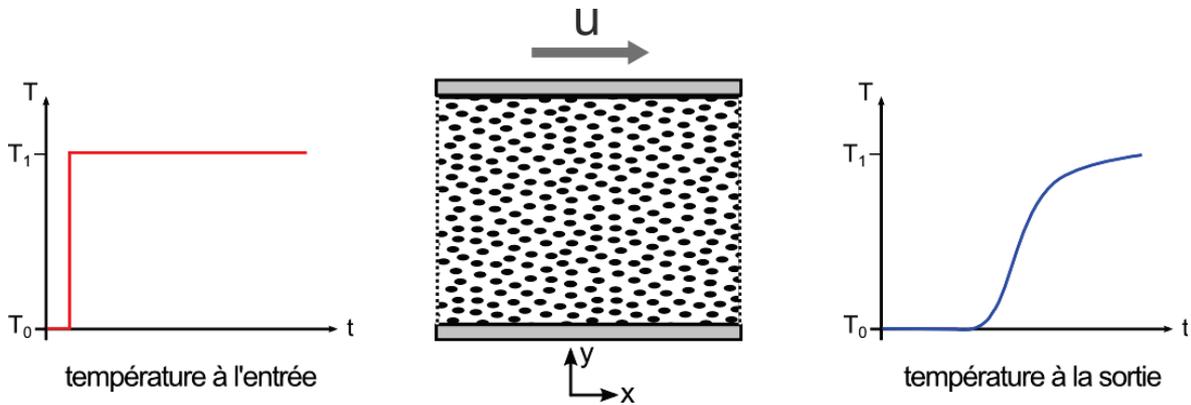


Figure II- 16 : Caractérisation de la dispersion longitudinale par excitation par un échelon de température.

Levec et Carbonell [22] notamment ont employé cette méthode sur un écoulement d'eau à travers un lit fixe de sphères de quelques millimètres de diamètre. Le modèle employé pour l'estimation est un modèle à deux températures, ce qui signifie que l'équilibre thermique n'est pas atteint entre les deux phases. Les résultats expérimentaux (Figure II- 17) montrent un bon accord avec ceux de Da Silveira (Figure II- 13).

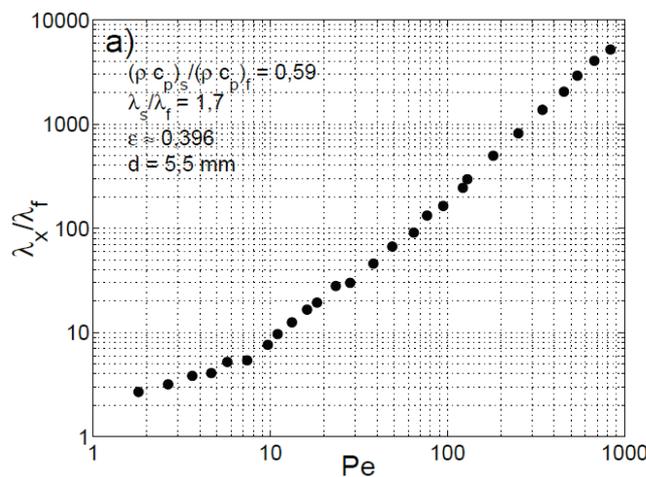


Figure II- 17 : Résultats expérimentaux de Levec et Carbonell [22]

Source plane linéique

Citons également les travaux de Metzger [23], qui parvient à identifier les coefficients de dispersion d'un écoulement d'eau à travers un lit fixe de billes de verre. La méthode employée consiste à diffuser un flux thermique au cœur du milieu poreux à travers un élément résistif linéique placé

perpendiculairement à la direction de l'écoulement. Un grand nombre de thermocouples dont les positions sont connues avec précision est placé en aval de cette source, dans l'axe pour l'estimation du coefficient longitudinal, et hors-axe, pour l'estimation du coefficient transverse. Le schéma du banc expérimental utilisé est visible en Figure II- 18.

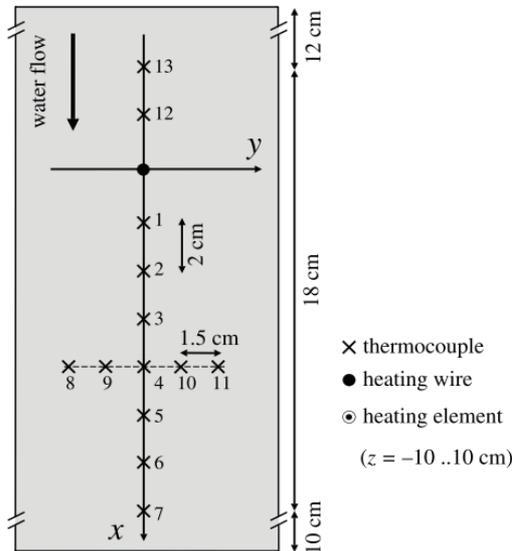


Figure II- 18 : Position des thermocouples et de la source linéique pour la détermination des coefficients de dispersion [23]

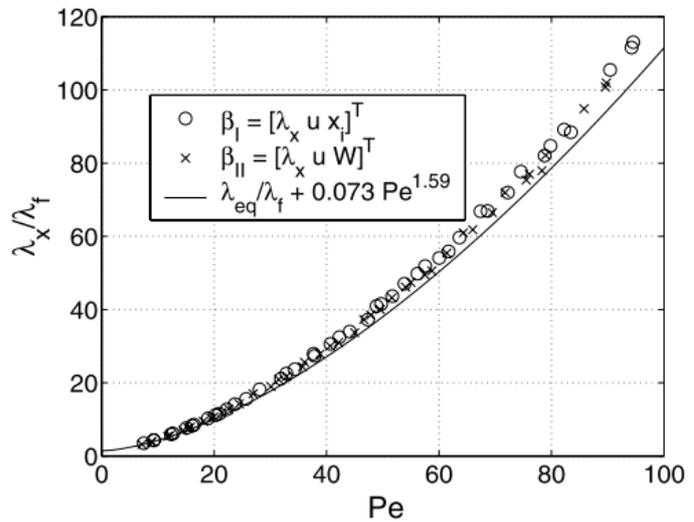


Figure II- 19 : Coefficients de dispersion longitudinale estimés en fonction du nombre de Péclet

IV.3.4 Mesure de la dispersion transverse

L'étude expérimentale de Levec et Carbonell présentée ci-dessus a également permis la mesure du coefficient de dispersion thermique transverse. La technique employée consiste à diviser la section d'entrée en deux, et d'injecter le fluide à deux températures différentes dans chacune de ces moitiés. Ainsi, on impose

$$T(y) = \begin{cases} T_1, & y < 0 \\ T_2, & y > 0 \end{cases} \quad \text{Eq. (2.13)}$$

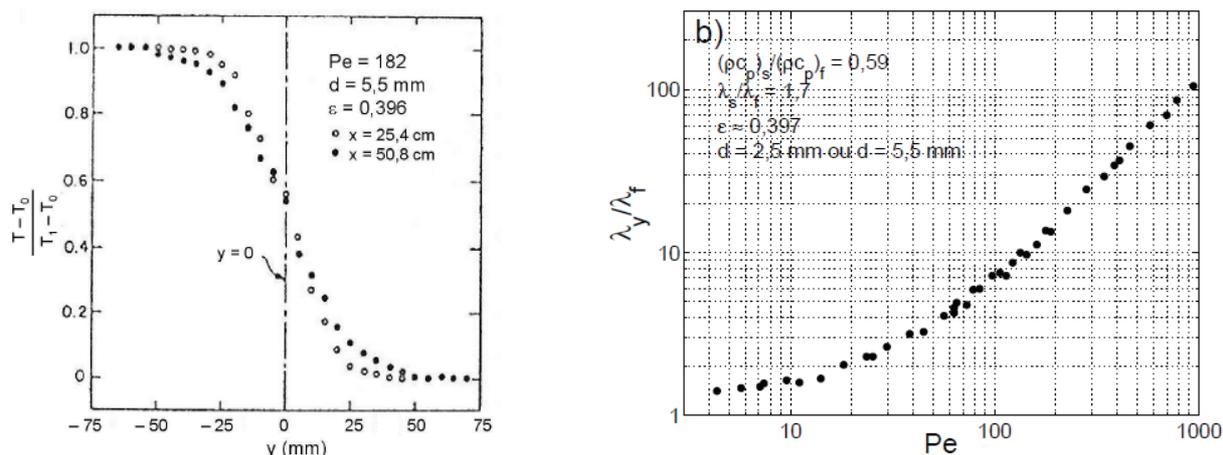


Figure II- 20 : Profils de température (à gauche), et évolution de la conductivité transverse en fonction du nombre de Péclet (à droite).

Les travaux de Metzger présentés plus haut ont permis eux aussi d'estimer l'évolution de la dispersion transverse en fonction du nombre de Péclet, mais la mesure s'est avérée peu sensible. En conséquence, les incertitudes sur les résultats sont conséquentes, et ne fournissent qu'une tendance.

Il n'existe que très peu de mesures de la dispersion thermique dans les conditions d'un procédé LCM. Citons tout de même les travaux de Hsiao *et al.* [24], qui mettent en évidence l'importance de la dispersion thermique dans les procédés RTM, en réalisant des injections anisothermes sur un renfort dont seule la direction des fibres est modifiée. Les résultats montrent un effet incontestable de la dispersion transverse, avec une conductivité thermique transverse évoluant de manière linéaire avec le nombre de Péclet. De plus, une analyse dimensionnelle montre que l'hypothèse de l'équilibre thermique local peut être appliquée dans le cas des procédés RTM.

V La maîtrise de la thermique des procédés LCM

L'étude et le contrôle des transferts de chaleur pendant le cycle de mise en forme des matériaux composites apparaît comme un des principaux leviers pour le pilotage du procédé et des propriétés induites. En effet, dès lors que le moule est fermé, les seuls moyens d'action dont on dispose pour influencer sur le procédé sont le débit d'injection (ou la pression), la température, et éventuellement la mécanique des renforts dans le cas du CRTM.

Les forts couplages qui existent entre les transferts de chaleur et les phénomènes physiques et chimiques impliquent de bien maîtriser la thermique de la mise en forme. Le bon déroulement des étapes d'injection, de polymérisation et de cristallisation pendant le cycle conditionne en effet les propriétés finales de la pièce. Dans le cas du procédé RTM thermoplastique, la polymérisation se produit généralement avec une cinétique rapide, la thermique du procédé et son contrôle sont donc primordiaux pour l'obtention de pièces homogènes et de propriétés satisfaisantes.

De plus, la maîtrise de l'histoire thermique du matériau implique de décrire soigneusement les transferts de chaleur pendant toutes les phases du procédé, à commencer par l'étape d'injection.

Aujourd'hui, la simulation de la thermique de l'imprégnation nécessite de lever en priorité deux verrous scientifiques qui sont :

- la prise en compte de la dispersion thermique, qui induit une augmentation apparente de la conductivité thermique du milieu poreux
- la prise en compte de la saturation du renfort. Contrairement à une majorité des travaux qui considèrent le déplacement d'un front plan, il est nécessaire de tenir compte de la zone partiellement saturée qui se forme à proximité immédiate du front de résine et qui s'étend sur plusieurs centimètres.

La simulation des transferts de chaleur pendant l'injection a fait l'objet d'une partie des travaux de thèse de Damien Lecointe [25] au LTN. Les échanges thermiques pendant le remplissage sont caractérisés par le nombre de Nusselt, qui représente le rapport entre les transferts convectifs et les transferts conductifs.

$$Nu = \frac{\text{transferts par convection}}{\text{transferts par conduction}} = \frac{hL}{\lambda_f} \quad \text{Eq. (2.14)}$$

λ_f est la conductivité thermique du fluide ($W.m^{-1}.K^{-1}$), h le coefficient de transfert convectif ($W.m^{-2}.K^{-1}$) et L une longueur caractéristique (m).

Dans le cas d'un nombre de Nusselt très grand, la température d'entrée est constante, et les flux thermiques pariétaux en entrée sont très importants. Au contraire, si le nombre de Nusselt est proche de 1, les échanges thermiques sont moins forts et il n'y a pas d'échelon brutal de température près des parois.

En supposant une viscosité constante et un front de matière plat, Lecointe a développé un code avec le logiciel Fluent décrivant le régime transitoire d'une injection anisotherme dans un moule RTM. Une condition de troisième espèce est imposée sur la paroi correspondant à l'entrée du moule. Ces résultats numériques ont ensuite été comparés à une injection réelle afin d'identifier le nombre de Nusselt. Dans cette approche, la dispersion thermique avait été prise en compte en considérant des conductivités thermiques plane et transverse apparentes issues de modèles simples, similaires à ceux que nous avons présentés dans la partie précédente (voir équations (2.15) et (2.16)). En prenant un nombre de Péclet calculé à partir de la vitesse de l'écoulement, on observe que les conductivités apparentes sont plus que doublées par rapport aux conductivités en statique. L'influence de la dispersion thermique sur les transferts de chaleur est représentée sur la Figure II- 21.

Pour $Pe = 49.7$

$$\lambda_{x_{eff}} = \lambda_{x_{statique}} + 0.8 Pe \lambda_r = 2.60 + 3.96 = 6.56 W.m^{-1}.K^{-1} \quad \text{Eq. (2.15)}$$

$$\lambda_{z_{eff}} = \lambda_{z_{statique}} + 0.1 Pe \lambda_r = 0.42 + 0.49 = 0.91 W.m^{-1}.K^{-1} \quad \text{Eq. (2.16)}$$

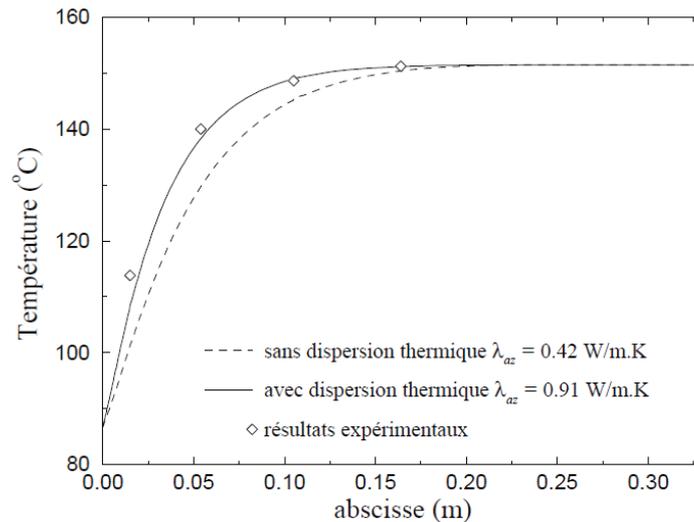


Figure II- 21 : Influence de la dispersion thermique transverse sur le profil de température final au centre de la pièce [25].

Dans cet exemple, la prise en compte de la dispersion, et ce même à travers des modèles relativement simples, a permis de décrire correctement l'évolution de la température dans le moule. En revanche, la comparaison des flux thermiques (Figure II- 22) expérimentaux et numériques aux positions des différents capteurs laisse apparaître des divergences. Le constat est le même en ce qui concerne la comparaison des nombres de Nusselt (Figure II- 23). Cet écart est dû à tous les paramètres qui n'ont pas été pris en compte dans la simulation, et, on peut le supposer, en particulier à la saturation qui n'est pas modélisée dans cette étude. Ces divergences nous ont incité à poursuivre ces travaux pour préciser l'effet de la saturation.

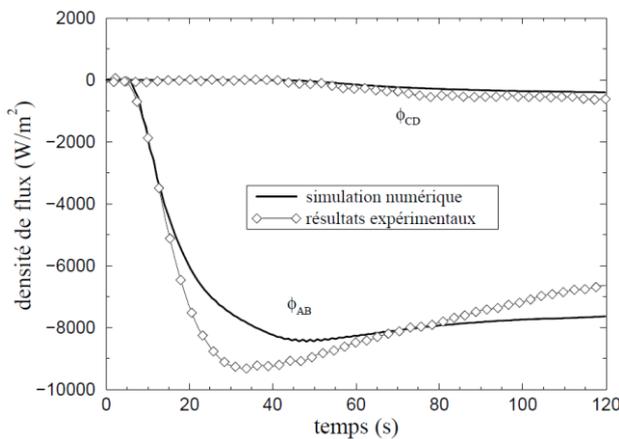


Figure II- 22 : Evolution des flux thermiques à l'interface pièce/moule aux emplacements des capteurs – comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques [25]

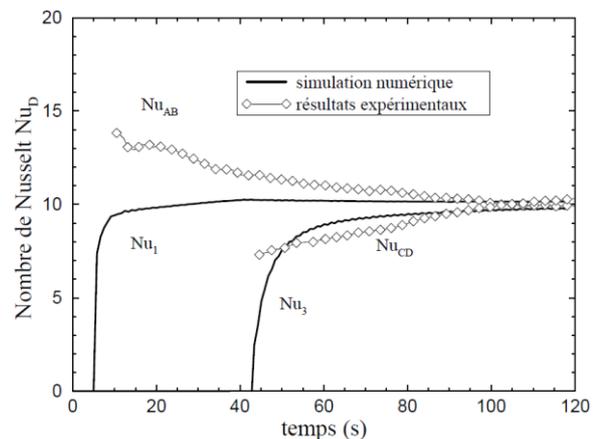


Figure II- 23 : Evolution des nombres de Nusselt aux emplacements des capteurs – comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques [25]

VI Objectifs de l'étude

Les travaux qui sont développés dans les chapitres suivants sont dans la continuité de ces constatations. Nous avons vu qu'il était nécessaire de prendre en compte une zone partiellement saturée au voisinage du front afin de décrire finement les transferts de chaleur pendant la phase d'injection. Dans ce contexte, le challenge est de pouvoir caractériser les transferts de chaleur expérimentalement pour les utiliser comme un indicateur de la saturation. Cette caractérisation passe par la détermination du tenseur de conductivité thermique du composite. **L'objectif est donc de décrire et quantifier le profil de saturation d'un renfort fibreux dans les conditions d'un procédé typique de RTM.**

À la différence des travaux de Damien Lecoite, nous décidons de concentrer nos efforts sur la quantification de la saturation en choisissant des conditions opératoires telles que la dispersion thermique puisse être négligée. Pour garantir cette hypothèse, on choisit :

- un renfort unidirectionnel, avec des mèches orientées dans le sens de l'écoulement. De cette manière, l'écoulement local transverse est limité.
- des vitesses d'injection relativement faibles car la dispersion thermique est proportionnelle au nombre de Péclet, donc à la vitesse d'injection.

Les expériences (qui seront décrites plus précisément dans la suite), ont été réalisées à des débits inférieurs à 4.2 mL.min^{-1} , ce qui correspond à une vitesse interstitielle moyenne d'environ 0.5 mm.s^{-1} . Calculons maintenant les nombres de Péclet associés à ces débits afin d'évaluer l'importance du phénomène de dispersion.

A l'échelle microscopique, c'est-à-dire dans les mèches, le nombre de Péclet Pe_μ s'écrit de la manière suivante :

$$Pe_\mu = \frac{\| \langle v_f \rangle^f \| l_\mu}{a_f} \quad \text{Eq. (2.17)}$$

$\langle v_f \rangle^f$ est la moyenne intrinsèque de phase de la vitesse du fluide (voir Annexe A pour la définition), l_μ une longueur caractéristique de l'écoulement et a_f la diffusivité thermique du fluide. La longueur caractéristique est choisie comme le diamètre maximal de la boule inscrite dans la phase fluide.

En faisant l'hypothèse que les vitesses moyennes des écoulements dans les macro-canaux et les micro-canaux sont égales, on obtient les nombres de Péclet suivants dans le sens longitudinal:

$$Pe_\mu = \frac{0.5 \cdot 10^{-3} \cdot 9.26 \cdot 10^{-6}}{1.05 \cdot 10^{-7}} = 0,044 \quad \text{Eq. (2.18)}$$

$$Pe_M = \frac{0.5 \cdot 10^{-3} \cdot 6.96 \cdot 10^{-4}}{1.05 \cdot 10^{-7}} = 3,31 \quad \text{Eq. (2.19)}$$

On constate que le nombre de Péclet associé aux écoulements dans les micro-pores est négligeable par rapport à celui concernant l'écoulement macroscopique. C'est donc ce dernier qui conditionne l'importance de la dispersion thermique. Le nombre de Péclet maximal est de 3,3, donc inférieur à 10 qui semble être la valeur à partir de laquelle les effets de la dispersion thermique ne sont plus négligeables (Figure II- 13). Dans le sens transverse, les écoulements sont minoritaires, donc les

nombres de Péclet transverses sont nécessairement encore plus faibles. Par conséquent, dans les conditions expérimentales choisies, l'hypothèse selon laquelle la dispersion est négligeable est validée.

VII Conclusion partielle

Ce chapitre a dressé un bref état de l'art des technologies de type LCM et de ses variantes. L'adaptation de ce type de procédé à des polymères thermoplastiques ouvre clairement de nouvelles perspectives, que ce soit sur le plan des propriétés prometteuses de ces matériaux, ou encore sur celui des nouveaux défis scientifiques à relever pour parvenir à la maîtrise de leur mise en forme. Dans ce contexte, la thermique apparaît comme un des principaux leviers permettant de contrôler le cycle de mise en œuvre afin d'atteindre des propriétés homogènes et son optimisation en temps. L'étude des transferts de chaleur pendant l'injection de la résine s'avère particulièrement délicate, en raison des forts couplages entre la thermique et les phénomènes physico-chimiques, telle que la dispersion thermique que nous avons présenté. La suite de l'étude va s'attacher à décrire un autre phénomène, celui de la création des vides pendant l'écoulement qui induit la formation d'une zone partiellement saturée au front. Cependant, comme nous l'avons évoqué, l'identification de cette saturation en utilisant les transferts de chaleur passe par la connaissance du tenseur de conductivité thermique effective du composite. Sa détermination fait justement l'objet du chapitre suivant.

Références bibliographiques du chapitre II

- [4] L. Gornet, “Généralités sur les matériaux composites,” 2008.
- [5] T. G. Gutowski, *Advanced composites manufacturing*. 1997.
- [6] C. Binétruy, “Physique du moulage des composites avancés: applications,” *Techniques de l’Ingénieur*, vol. am3719, 2006.
- [7] N. Patel, “Micro-scale flow behavior, fiber wetting and void formation in liquid composite molding,” Ohio State University, 1994.
- [8] G. Ziegmann, “Processing of fibre composites-a comparison of thermoplastics and thermosets,” *Verbundwerk*, 1991.
- [9] A. Miller and A. G. Gibson, “Impregnation techniques for thermoplastic matrix composites,” *Polymers and Polymer Composites*, vol. 4, no. 7, pp. 459–481, 1996.
- [10] M. D. Wakeman and C. D. Rudd, “Compression Molding of Thermoplastic Composites,” *Comprehensive Composite Materials*, vol. 2, pp. 915–963, 2000.
- [11] K. Van Rijswijk and H. Bersee, “Reactive processing of textile fiber-reinforced thermoplastic composites – An overview,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 38, no. 3, pp. 666–681, Mar. 2007.
- [12] H. Parton and I. Verpoest, “In situ polymerization of thermoplastic composites based on cyclic oligomers,” *Polymer composites*, vol. 26, no. 1, pp. 60–65.
- [13] H. Kramers and G. Alberda, “Frequency response analysis of continuous flow systems,” *Chemical Engineering Science*, vol. 2, pp. 173–181, 1953.
- [14] E. Tsotsas, “Über die Wärme- und Stoffübertragung in durchströmten Festbetten,” Düsseldorf, 1990.
- [15] D. Wen and Y. Ding, “Heat transfer of gas flow through a packed bed,” *Chemical Engineering Journal*, vol. 61, pp. 3532–3542, 2006.
- [16] R. Bauer and E. U. Schlünder, “Effective radial thermal conductivity of packing in gas flow,” *Int. Chem. Eng.*, vol. 18, pp. 181–188, 1978.
- [17] M. Kaviany, *Principles of Heat Transfer in Porous Media*, Mechanical. 1995.
- [18] O. T. Da Silveira, “Dispersion thermique en milieu poreux périodique: une étude numérique,” IPRJ Nova Friburgo, 2001.
- [19] S. Yagi, D. Kunii, and N. Wakao, “Studies on axial effective thermal conductivities in packed beds,” *AIChE Journal*, vol. 6, pp. 543–546, 1960.

- [20] T. Özgümüş, M. Mobedi, Ü. Özkol, and A. Nakayama, “Thermal Dispersion in Porous Media – A Review on Approaches in Experimental Studies,” *International Advanced Technologies Symposium*, pp. 266–271, 2011.
- [21] D. J. Gunn and J. F. C. De Souza, “Heat transfer and axial dispersion in packed beds,” *Chemical Engineering Science*, vol. 29, pp. 1363–1371, 1974.
- [22] J. Levec and R. G. Carbonell, “Longitudinal and lateral thermal dispersion in packed beds.,” *AIChE Journal*, vol. 31, pp. 581–602, 1985.
- [23] T. Metzger, S. Didierjean, and M. D., “Optimal experimental estimation of thermal dispersion coefficients in porous media,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 47, no. 14–16, pp. 3341–3353, Jul. 2004.
- [24] K. Hsiao, H. Laudorn, and S. G. Advani, “Experimental Investigation of Heat Dispersion Due to Impregnation of Viscous Fluids in Heated Fibrous Porous During,” *Journal of Heat Transfer*, vol. 123, pp. 178–187, 2001.
- [25] D. Lecointe, “Caractérisation et simulation des processus de transferts lors d’injection de résine pour le procédé RTM,” Nantes University, 1999.

CHAPITRE III

Mesure et modélisation du tenseur de conductivité effective du composite

I	ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE	35
I.1	LA MESURE DES PROPRIETES THERMIQUES DES COMPOSITES	35
I.1.1	<i>Méthodes en régime stationnaire</i>	36
I.1.2	<i>Méthodes en régime transitoire.....</i>	37
I.1.2.a	Méthode flash.....	37
I.1.2.b	Méthode du fil chaud.....	38
I.1.2.c	Sondes à choc.....	39
I.1.2.d	Méthodes en régime périodique établi.....	39
I.1.2.e	Les méthodes de type source plane.....	41
	Sondes Hot Disk et C-Therm	41
	Méthode de la chauffeurette instrumentée.....	42
I.1.3	<i>Tableau récapitulatif des différentes méthodes</i>	<i>42</i>
I.1.4	<i>Mesure de la chaleur spécifique.....</i>	<i>44</i>
I.2	MODELISATION DES PROPRIETES THERMIQUES DES COMPOSITES.....	45
I.2.1	<i>Modélisation de la conductivité thermique plane.....</i>	<i>46</i>
I.2.1.a	Composites unidirectionnels.....	46
I.2.1.b	Cas des stratifiés – prise en compte de l’orientation des plis.....	46
I.2.2	<i>Modélisation de la conductivité thermique transverse.....</i>	<i>47</i>
I.2.2.a	Composites unidirectionnels.....	48
I.2.2.b	Cas des stratifiés.....	50
I.2.2.c	Cas des renforts tissés – prise en compte de l’ondulation des fibres	51
II	CARACTERISATION EXPERIMENTALE DES MATERIAUX DE L’ETUDE.....	51
II.1	PRESENTATION DES BANCS EXPERIMENTAUX DEVELOPPES AU LABORATOIRE.....	52
II.1.1	<i>Mesure de la conductivité plane – Méthode Copernic</i>	<i>52</i>
II.1.2	<i>Méthode de la chauffeurette instrumentée</i>	<i>56</i>
II.2	RESULTATS	59
II.2.1	<i>Mesures des propriétés du liquide seul</i>	<i>59</i>
II.2.1.a	Chaleur spécifique.....	59
II.2.1.b	Conductivité thermique	61
II.2.2	<i>Mesure des propriétés de la préforme sèche.....</i>	<i>62</i>
II.2.2.a	Conductivité plane.....	62
II.2.2.b	Conductivité transverse	64
II.2.3	<i>Mesure des propriétés du composite saturé</i>	<i>66</i>
II.2.3.a	Conductivité plane.....	66

II.2.3.b	Conductivité transverse	68
II.2.4	<i>Synthèse et comparaison avec les modèles usuels</i>	70
III	MODELISATION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE TRANSVERSE DU COMPOSITE	
INSATURE		71
III.1	PROCEDURES D’HOMOGENEISATION.....	71
III.1.1	<i>Principe général</i>	71
III.1.2	<i>Choix du VER</i>	72
III.1.3	<i>Homogénéisation par méthode des moyennes volumiques</i>	73
III.1.3.a	Principe et hypothèses	73
III.1.3.b	Développement des équations	74
III.1.4	<i>Homogénéisation périodique</i>	75
III.2	DEFINITION DE LA MICRO- ET DE LA MACRO-SATURATION.....	78
III.2.1	<i>Définition des grandeurs géométriques</i>	78
III.2.2	<i>Micro-saturation</i>	79
III.2.3	<i>Macro-saturation</i>	79
III.3	FAISCEAU DE COURBES DE CONDUCTIVITE TRANSVERSE.....	80
III.3.1	<i>Protocole</i>	80
III.3.2	<i>Résultats</i>	82
IV	CONCLUSION PARTIELLE	85

I Etude bibliographique

TOUT d'abord, la première partie de ce chapitre est consacrée à dresser un panorama des méthodes de caractérisation thermique des matériaux composites à matrice organique recensées dans la littérature. Pour ces matériaux hétérogènes, on parle de conductivité thermique effective. En effet lorsqu'un gradient de température est imposé à un milieu poreux saturé, un régime permanent s'établit. La définition du tenseur de conductivité effectif $\bar{\lambda}_e$ est justifiée formellement par les techniques de changement d'échelle qui montrent qu'une relation similaire à la loi de Fourier s'applique pour les milieux homogènes, sur des flux et gradients moyennés :

$$\langle \varphi \rangle = -\bar{\lambda}_e \langle \nabla T \rangle \quad \text{Eq. (3.1)}$$

où l'opérateur $\langle \ \rangle$ désigne la moyenne.

Celles-ci permettent de déterminer les propriétés thermiques d'un matériau, à savoir :

- Le tenseur de conductivité effectif $\bar{\lambda}_e$ ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
- Le tenseur de diffusivité thermique \bar{a} (m^2/s)
- La chaleur spécifique C_p ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)

I.1 La mesure des propriétés thermiques des composites

Il existe un grand nombre de méthodes de mesure des propriétés thermiques parmi lesquelles nous distinguerons deux familles :

- les méthodes en régime stationnaire
- les méthodes en régime transitoire

Dans la suite, on considérera que l'on se trouve dans le repère des directions principales noté (Oxyz), λ_{xx} et λ_{yy} étant les conductivités planes, et λ_{zz} étant la conductivité transverse, c'est-à-dire à travers l'épaisseur. Dans ce repère le tenseur de conductivité thermique d'ordre 2 s'écrit de la manière suivante.

$$\bar{\lambda} = \begin{bmatrix} \lambda_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{zz} \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (3.2)}$$

Toutes les méthodes fonctionnent sur le même principe, qui consiste en l'excitation thermique du matériau à étudier (à l'aide de résistances électriques, de chaufferettes, de lampes flash ou encore d'un laser), suivie de la mesure de sa réponse thermique au moyen de thermocouples, de fluxmètres, ou bien encore d'une caméra infrarouge.

I.1.1 Méthodes en régime stationnaire

Dans ce type de mesure, le temps n'intervient pas. Elles ne permettent d'accéder qu'à la conductivité thermique. Ces méthodes visent à mesurer simultanément le flux de chaleur traversant un échantillon et une différence de température.

La méthode d'identification est simple puisqu'elle est basée sur la loi de Fourier unidimensionnelle.

$$\lambda = \frac{\varphi e}{S} (T_1 - T_2) \quad \text{Eq. (3.3)}$$

où e et S sont respectivement l'épaisseur et la surface de l'échantillon, et φ (W/m^2) le flux thermique.

La mesure par plaque chaude gardée est la méthode la plus répandue en raison de sa simplicité. Elle est même désormais standardisée [26]. La géométrie de l'échantillon est constituée d'une plaque dont l'épaisseur est faible devant ses dimensions dans le plan. Le flux est obtenu directement par la mesure de la puissance dégagée dans la chaufferette électrique, et la différence de température par des thermocouples. Une garde thermique réalisée généralement dans le même matériau que l'échantillon limite les pertes latérales (voir Figure III- 1).

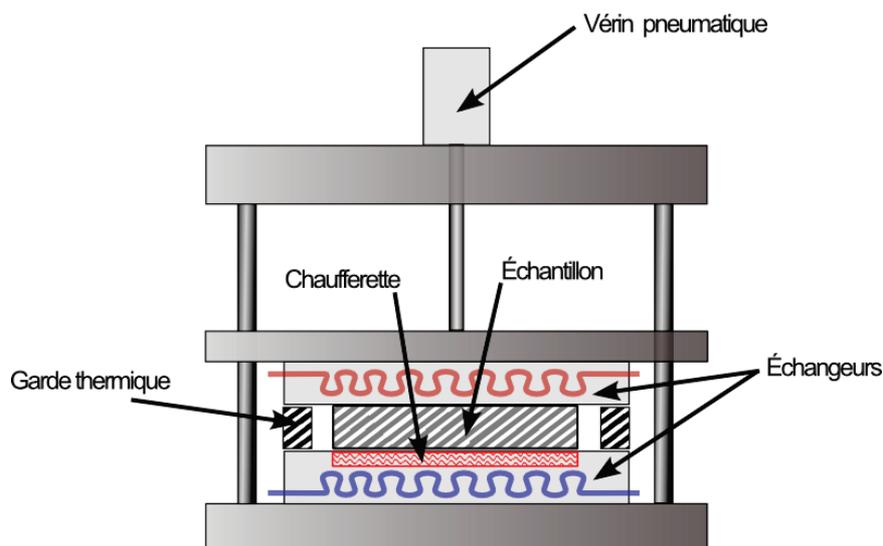


Figure III- 1 : Schéma de principe de la plaque chaude gardée

Cette méthode peut être utilisée pour une large gamme de température, dépendamment de la température imposée aux échangeurs de chaleur. Les problèmes de la méthode sont liés à l'expérimentation et rappelés par Degiovanni [2-3]:

- établissement d'un flux unidirectionnel dans l'échantillon
- atteinte du régime permanent
- précision des mesures de flux et de températures.

Bien que très employée, elle ne permet de mesurer que la conductivité transverse des matériaux composites réticulés. Cependant, on peut noter qu'il est tout de même possible de mesurer la

conductivité plane d'échantillons, en découpant et assemblant ceux-ci afin que les fibres se trouvent dans la direction verticale (voir Figure III- 2).

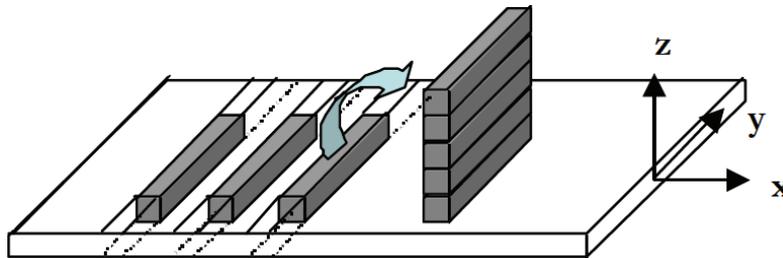


Figure III- 2 : Découpe d'un échantillon servant pour la mesure de la conductivité thermique dans la direction x

I.1.2 Méthodes en régime transitoire

Pour ce type de méthode, les mesures sont effectuées en fonction du temps et permettent la détermination de plusieurs paramètres : conductivité, mais aussi diffusivité et effusivité, qui sont des associations de λ et ρCp .

I.1.2.a Méthode flash

La méthode flash, très largement employée, permet de mesurer la diffusivité thermique d'un échantillon. A l'origine dédiée aux matériaux isotropes et homogènes, son emploi s'est étendu aux matériaux composites anisotropes. Une impulsion thermique de type Dirac est générée sur la face avant d'un échantillon, tandis que l'évolution de la température de la face arrière est mesurée (Figure III- 3). La sollicitation thermique, généralement obtenue par une source laser, doit être répartie de façon uniforme sur la face avant.

La vitesse de propagation de la température à travers l'échantillon est ensuite reliée à la diffusivité du matériau et à des paramètres géométriques. En négligeant les pertes thermiques et en supposant un pulse de type Dirac, la température à la profondeur z d'un échantillon d'épaisseur e est donnée par :

$$T(z, t) = \frac{\varphi}{e\rho Cp} \left(1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \cos\left(\frac{n\pi e}{z}\right) \exp\left(\frac{-n^2\pi^2\alpha_z t}{e^2}\right) \right) \quad \text{Eq. (3.4)}$$

où φ est le flux de chaleur incident.

Parker *et al.* [29] ont développé un modèle simple qui permet de déterminer la diffusivité thermique uniquement par mesure de l'épaisseur de l'échantillon et du temps de demi-montée en température, tel que :

$$a = 0,139 \frac{e^2}{t_{\frac{1}{2}}} \quad \text{Eq. (3.5)}$$

Notons que des modèles plus évolués existent également, prenant en compte les pertes par convection ou par rayonnement.

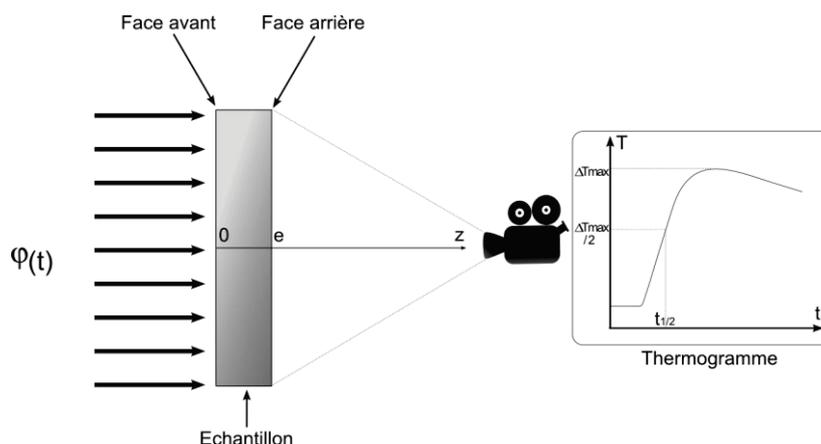


Figure III- 3 : Principe de la mesure flash

De nombreuses variantes ont vu le jour, à commencer par celle de Donaldson [30], afin d'estimer les diffusivités transverse et radiale simultanément. Dans ce cas particulier, l'excitation sur la face avant est hétérogène et vise à créer un gradient dans le plan de l'échantillon.

Dans la pratique, la température en face arrière est généralement mesurée avec des thermocouples ou une caméra infrarouge. Dans le premier cas, le signal est précis, mais une incertitude non négligeable est liée à l'intrusivité des thermocouples. Dans le second, la résolution de la caméra doit être suffisamment grande pour capter les faibles variations de température sur des temps courts. Les imprécisions de la méthode sont dues principalement aux conditions expérimentales, comme la quantification des pertes radiatives sur l'échantillon ou encore l'homogénéité du flux incident. Les conditions aux limites imposées peuvent être elles aussi sources d'erreur, car elles doivent être modifiées dans le cas d'un flux sur un matériau hétérogène [31].

Enfin, dans le cas d'échantillons composites à fibres continues, la méthode n'est plus valable lorsque les épaisseurs des échantillons sont faibles. Ceux-ci ne sont plus homogènes, ce qui a pour effet d'induire des erreurs conséquentes dans la détermination de la diffusivité. Cette méthode est généralement employée pour des échantillons réticulés, même s'il existe des porte-échantillons spécifiques pour la mesure sur des liquides.

I.1.2.b Méthode du fil chaud

La méthode du fil chaud consiste à dissiper un flux thermique radial à travers un fil résistif de faible diamètre préalablement inséré entre deux couches d'un même matériau homogène. La réponse thermique du matériau est mesurée par des micro-thermocouples placés au sein-même du matériau, à différentes positions. La variation de température du fil chauffant est relevée soit par un thermocouple directement soudé sur celui-ci, soit directement par mesure de la résistance électrique du fil ou encore par un thermocouple placé au plus près de ce dernier.

L'échantillon, initialement isotherme, est soumis à un échelon de flux, délivré par effet Joule par le fil résistif. Si le fil est supposé infiniment long et de rayon négligeable, le transfert est radial et la conductivité thermique peut être identifiée à partir de l'évolution de la température en un point donné. La méthode classique consiste à ne considérer que les temps longs. La réponse en température étant

asymptotique (voir Figure III- 4), on montre que la conductivité peut s'exprimer simplement en fonction de l'angle α formé par la courbe $T=f(\ln(t))$:

$$\lambda = \frac{P_0}{4\pi l \tan \alpha} \quad \text{Eq. (3.6)}$$

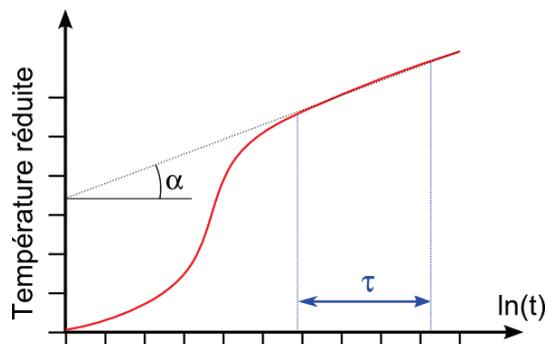


Figure III- 4 : Réponse thermique typique d'une caractérisation par fil chaud

Cependant, ce modèle étant basé sur l'hypothèse des milieux infinis, il faut s'assurer que les temps choisis pour l'identification ne soient pas trop longs pour que les effets de bord ne se fassent pas ressentir. Par ailleurs, on doit attendre que le régime soit atteint, on a donc un intervalle de mesure τ qui constitue un compromis. Du reste, l'échelle logarithmique pose un problème sur la précision de la pente.

Des variantes de cette méthode ont également été mises au point pour s'adapter aux cas des matériaux orthotropes. Jarny [32] par exemple a développé une méthode inverse capable d'estimer les deux conductivités dans les directions perpendiculaires au fil, ainsi que le terme capacitif ρC_p . Dans cette configuration, de nombreux micro-thermocouples sont insérés entre les échantillons à caractériser et placés dans les deux directions orthogonales au fil. Néanmoins, cette méthode est peu utilisée car très coûteuse en temps, en raison du nombre de thermocouples à placer avec précision dans l'échantillon.

I.1.2.c Sondes à choc

Le principe des sondes à choc, ou sondes thermiques, est le même que celui du fil chaud. La différence réside dans le fait qu'il s'agit d'éléments compacts de géométrie cylindrique ou sphérique. La mesure de la température est très généralement déduite de la variation de résistance de l'élément chauffant. En effet, la résistance électrique étant beaucoup plus grande que dans le cas du fil chaud, celle-ci est beaucoup plus facile à mesurer.

La sonde à choc trouve son application dans la mesure de conductivité des liquides, ou des milieux poreux homogènes. Elle impose un contact parfait entre la sonde et le milieu dont on mesure la conductivité, ce qui rend donc la mesure beaucoup plus délicate dans le cas des solides, puisque le contact solide-solide est souvent mauvais. De plus, cette méthode est difficilement utilisable pour les milieux anisotropes.

I.1.2.d Méthodes en régime périodique établi

Ces méthodes sont caractérisées par l'emploi d'un régime périodique établi dans lequel la mesure d'une ou de plusieurs températures permet d'obtenir le déphasage entre la sollicitation et la mesure. L'extrémité de l'échantillon à caractériser est alternativement chauffée pendant une demi-période $P/2$,

et refroidie pendant la demi-période suivante P/2. La variation de température de l'échantillon est périodique, ceci quelque soit le point de mesure considéré. Lorsque le régime est établi, la diffusivité thermique peut être mesurée à partir des températures enregistrées à différents points d'espace.

A l'origine, cette méthode a été développée en 1863 par Angström [33], qui imposait une variation périodique de température à l'extrémité d'un long barreau de faible section. Après un certain temps le champ de température dans ce barreau atteint un état périodique, indépendamment du champ de température initial choisi.

La figure suivante (Figure III- 5) présente un exemple des signaux de température recueillis à différentes abscisses d'un barreau en polypropylène. On remarque bien que l'atténuation et le déphasage grandissent à mesure qu'on s'éloigne de la face excitée.

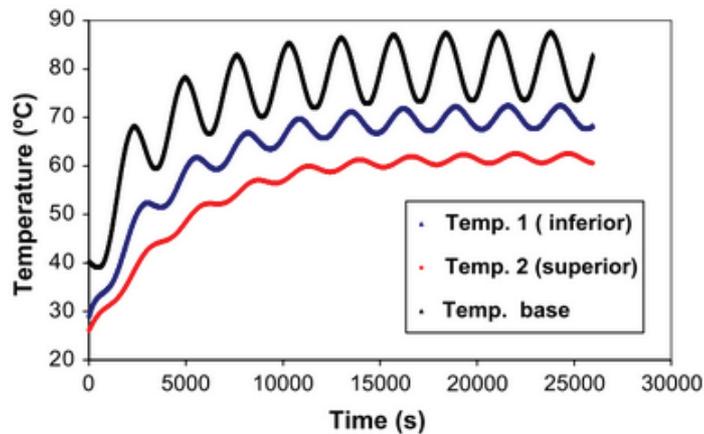


Figure III- 5 : Allure des températures à différentes abscisses d'un barreau en polypropylène.[34]

Les hypothèses faites pour le modèle associée à la méthode d'Angstrom sont les suivantes :

- La conductivité thermique et la chaleur spécifique sont indépendantes de la température dans la gamme de température étudiée.
- La conductivité thermique est isotrope.
- Les flux thermiques sont strictement 1D et orientés dans le sens du barreau.
- L'extrémité non excitée du barreau est supposée rester à température constante.

Moyennant ces hypothèses, la diffusivité thermique est reliée à l'amplitude et au déphasage Δt des températures T1 et T2 selon :

$$a = \frac{l^2}{2 \Delta t \ln\left(\frac{T_1}{T_2}\right)} \quad \text{Eq. (3.7)}$$

où l est la distance entre les thermocouples.

I.1.2.e Les méthodes de type source plane

Les méthodes transitoires de type source plane dérivent des travaux de Gustafsson [9-10], qui a mis au point une technique capable d'estimer simultanément la conductivité et la diffusivité thermique d'un échantillon homogène et isotrope solide.

Les sondes résistives planes utilisées sont de différentes géométries (disques, bandes..etc.) et intégrées de la façon suivante :

- soit prises en sandwich entre deux échantillons identiques d'un matériau à caractériser
- soit placées entre l'échantillon à caractériser d'un côté et un très bon isolant thermique de l'autre (mousse PU par ex.)

Un flux constant est diffusé dans la sonde par effet Joule, et la réponse thermique du matériau est enregistrée :

- par mesure de sa température à proximité de la sonde
- par mesure de la température de la sonde elle-même, au moyen de thermocouples intégrés ou par enregistrement de sa propre résistance électrique.

Sondes Hot Disk et C-Therm

Ces deux noms désignent des systèmes commerciaux éprouvés qui sont basés sur la méthode des sources planes transitoires.

Le dispositif Hot Disk est le système commercial issu des travaux de Silas Gustafsson [36], qui est constitué d'un lot de sondes circulaires constituées d'un fil de nickel en spirale dans une enveloppe de Kapton™ (Figure III- 6) de différents diamètres, associées à une centrale d'acquisition capable de mesurer des résistances électriques avec une grande précision.



Figure III- 6 : Vue détaillée d'une sonde Hot Disk en Kapton™

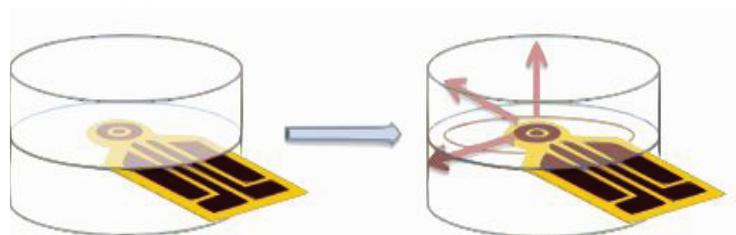


Figure III- 7 : Schéma de principe du Hot Disk en mode symétrique

La sonde constitue à la fois la source thermique et le capteur de température, puisque la mesure de température se fait indirectement par mesure de la résistance du circuit électrique. Le modèle étant fondé sur l'hypothèse des milieux semi-infinis, des critères sur la géométrie de la pièce sont imposés, qui peuvent rapidement devenir contraignants. Ainsi, il existe une épaisseur et un diamètre minimal d'échantillon qui dépend de la taille de la sonde. Par ailleurs, les modèles utilisés dans la version commerciale sont basés sur des temps modifiés et sont délicats à utiliser.

Même si cette méthode n'est pas adaptée aux composites anisotropes, un module de mesure permet tout de même la mesure de la conductivité d'échantillons orthotropes (conductivité uniforme dans le plan), à condition toutefois que le terme ρC_p soit connu.

Le C-Therm de la société TCI est un appareillage qui fonctionne sur le même principe (mesure de résistance électrique), à la différence près que la mesure est dissymétrique. Il s'agit d'une sonde d'un diamètre d'environ 10 mm , qui peut s'adapter à des échantillons solides, pâteux ou encore liquides. Cette technologie n'est valable que pour des échantillons isotropes et homogènes.

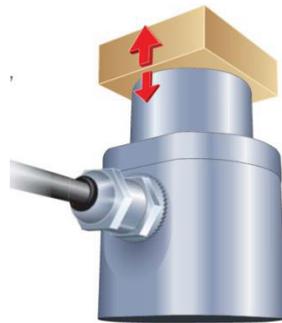


Figure III- 8 : Sonde C-Therm de TCI

Méthode de la chaufferette instrumentée

Thomas [37] développe en 2010 une méthode permettant l'estimation du tenseur de conductivité effective et de la chaleur spécifique des composites anisotropes, sans faire d'hypothèses *a priori* sur les directions principales. Cette méthode dérive du principe de la sonde de Gustafsson, et emploie une chaufferette instrumentée de plusieurs thermocouples sur laquelle plusieurs zones de chauffage peuvent être activées ensemble ou séparément selon la configuration désirée. Cette méthode a été modifiée dans cette étude, dans le but de changer la configuration expérimentale, et elle fera d'ailleurs l'objet d'une description précise plus loin dans ce chapitre.

I.1.3 Tableau récapitulatif des différentes méthodes

Le tableau présenté ci-après (Tableau 1) rassemble les principales propriétés et caractéristiques des différentes méthodes énumérées. Il ne prétend pas être exhaustif mais apporte une vision globale de l'état de l'art. L'observation de ce tableau montre qu'il n'existe aucune méthode adaptée à la mesure sur composite anisotrope liquide, qui constitue un des cas les plus complexes. Dans la suite, un dispositif permettant la mesure de toutes les composantes du tenseur de conductivité d'un composite saturé est présenté.

	Variante	Grandeur mesurée	Gamme de conductivité mesurée (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	Gamme de température (°C)	Temps de mesure	Type d'échantillon	Anisotropie	Limites
	Plaque chaude gardée	λ_z	0,05-5	20 à 500	plusieurs heures	solide	conductivité plane possible par découpe	Temps de mesure
	Méthode flash	α_z	0,1-2000	-120 à 400	quelques secondes	solide (liquide si porte-échantillon adapté)	conductivité plane possible	Incertitudes sur la position des TC Prise en compte des pertes radiatives
	Fil chaud	λ (ρC_p et tenseur sous certaines conditions)	0,1-10	20 à 1500	quelques minutes		possible avec variantes	Résistance thermique de contact entre le fil et l'échantillon Instrumentation délicate et longue
	Sondes à chocs	α	0,01-10	-20 à 90	Inférieur à 500s	solide, liquides, pâtes	non	domaine temporel difficile à fixer mauvais contact de la sonde avec les solides
	Méthode d'Angstrom	α_x			quelques minutes à heures suivant l'échantillon	solide	non	Instrumentation lourde
Sources planes transitoire	Hot Disk	α (ou $\lambda_z + \lambda_x$ en mode orthotrope)	0,03-100	-220 à 1200	quelques minutes	solide	orthotrope seulement	Contraintes fortes sur la géométrie de l'échantillon
	C-Therm	α	0-120	-50 à 200	quelques secondes	solide, pâte ou liquide	non	Contact entre la sonde et l'échantillon
	Chaufferette instrumentée	$\lambda_x, \lambda_y, \lambda_z$ et ρC_p	<10	20 à 120	quelques minutes	solide	oui	Temps associé à la méthode inverse d'estimation

Tableau 1 : Récapitulatif des caractéristiques des différentes méthodes de caractérisation thermique

I.1.4 Mesure de la chaleur spécifique

La chaleur spécifique est classiquement mesurée par calorimétrie différentielle à balayage (DSC : Differential Scanning Calorimetry).

Contrairement à la DSC à flux qui ne possède qu'un four, la DSC à compensation de puissance possède deux fours identiques

Il existe de nombreuses variantes, mais les dispositifs classiques (Figure III- 9) sont généralement composés de deux fours (DSC à compensation de puissance) contenant deux plots sur lesquels sont posés deux capsules d'aluminium, la première contenant l'échantillon et la seconde, vide, servant de référence. Les deux micro-fours soumettent les échantillons à un même cycle thermique. Ces deux capsules étant identiques, la différence de flux mesurée entre P1 et P2 est uniquement due aux changements physiques et chimiques de l'échantillon.

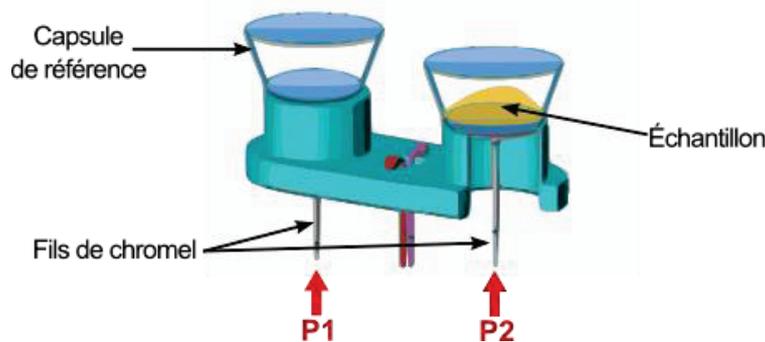


Figure III- 9 : Schéma de principe d'une DSC

Le signal enregistré est proportionnel à la différence de chaleur fournie entre les deux micro-fours : dH/dt . L'appareil régule de telle sorte qu'il y ait égalité de ces deux températures en tout temps. On a donc l'équation suivante :

$$\phi(t) \sim \frac{dH}{dt} = a \frac{dQ_{ech}}{dt} + F_0(T, \frac{dT}{dt}) \quad \text{Eq. (3.8)}$$

où F_0 est un terme modélisant les fuites thermiques des micro-fours, qui sont fonction de la température T et de la vitesse de balayage. dQ_{ech}/dt est la chaleur fournie à l'échantillon, donnée par :

$$\frac{dQ_{ech}}{dt} = -m_e c p_e \frac{dT_e}{dt} + m \Delta H \frac{d\alpha}{dt} \quad \text{Eq. (3.9)}$$

Ici, le premier terme correspond à la capacité thermique de l'échantillon et le second aux éventuelles sources thermiques de réaction de polymérisation.

La DSC présente au laboratoire est une DSC à flux (Thermal Analysis Q200). Contrairement à la DSC à compensation de puissance, elle ne possède qu'un seul four. Prime [38] présente plusieurs protocoles couramment employés pour la détermination de la chaleur spécifique des polymères et composites. Le protocole le plus simple comprend les étapes suivantes :

- Une première expérience comparant les flux entre un creuset vide et un creuset contenant l'échantillon

- Une seconde expérience réalisée sur deux creusets vides, servant de ligne de base pour la correction liée à l'appareillage.

La chaleur spécifique est alors directement accessible par l'équation suivante :

$$Cp(T) = \frac{\varphi}{m_{ech} \left(\frac{dT}{dt} \right)} \quad \text{Eq. (3.10)}$$

où m_{ech} est la masse de l'échantillon (généralement ~ 10 mg), et φ le flux thermique mesuré.

Le second protocole implique l'utilisation de saphirs dont la chaleur spécifique est connue de manière très précise. Le protocole est le suivant :

- 1. Creuset+échantillon/Creuset vide
- 2. Creuset+saphir/creuset vide
- 3. Ligne de base par comparaison creuset vide/ creuset vide
- Exp(2)-Exp(3) permet d'accéder au Cp expérimental du saphir. Un coefficient de correction est alors calculé pour tenir compte de la différence avec la valeur issue des tables.

$$R(T) = \frac{Cp_{théorique}}{Cp_{expérimental}} \quad \text{Eq. (3.11)}$$

- Exp(1)-Exp(3) fournit la valeur de la chaleur spécifique de l'échantillon en tenant compte du facteur de correction calculé à l'étape précédente.

$$Cp_{éch.}(T) = R(T).Cp_{exp.éch.} \quad \text{Eq. (3.12)}$$

Lorsqu'il s'agit de matériaux composites, la difficulté majeure réside dans le choix de la taille de l'échantillon. Si sa masse est trop faible, il risque de ne pas être représentatif du milieu hétérogène. Si au contraire elle est importante, des gradients de température peuvent apparaître dans celui-ci pendant les phases de chauffage et de refroidissement. On prendra soin dans ce cas à choisir des vitesses de balayage faibles, ce qui diminue le flux mesuré et augmente par conséquent l'erreur. Pour toutes ces raisons, on évite généralement autant que possible de recourir à la DSC pour des mesures appliquées aux composites.

I.2 Modélisation des propriétés thermiques des composites

La modélisation des propriétés thermiques des composites, et particulièrement celle du tenseur de conductivité thermique, a fait l'objet d'un nombre considérable de travaux de recherche dans lesquels le renfort est composé soit de fibres, soit de particules. Les paragraphes qui suivent s'attachent à énumérer et présenter les plus employés et ceux qui s'adaptent le mieux aux matériaux composites à fibres continues.

I.2.1 Modélisation de la conductivité thermique plane

I.2.1.a Composites unidirectionnels

La modélisation de la conductivité thermique d'un composite unidirectionnel (noté UD dans la suite) permet de se ramener dans un premier temps à un des cas les plus simples. Dans la suite, nous noterons λ_1 , λ_2 et λ_3 les conductivités thermiques effectives de l'UD, représentées sur la Figure III- 10.

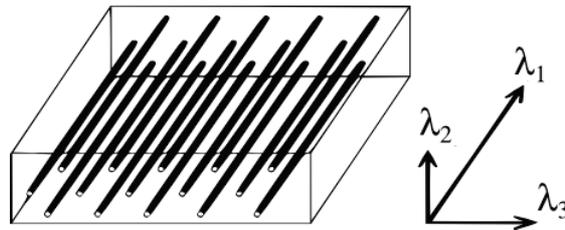


Figure III- 10 : Directions principales de l'UD

En ce qui concerne la conductivité thermique longitudinale, notée λ_1 sur la Figure III- 10, de nombreux auteurs [39–42] s'accordent à dire que le modèle parallèle, également appelé loi des mélanges est le plus adapté, celui-ci est en effet exact. Dans ce modèle, la conductivité effective est décrite comme une moyenne des conductivités des deux phases pondérées par leurs fractions volumiques respectives (Eq. 3.13). L'évolution de la conductivité thermique est donc linéaire et proportionnelle au taux de fibres.

$$\lambda_e^{\parallel} = \lambda_1 = (1 - \Phi)\lambda_r + \Phi \lambda_f^{\parallel} \quad \text{Eq. (3.13)}$$

λ_e^{\parallel} est la conductivité longitudinale effective de l'UD, λ_r celle de la résine, qui est supposée isotrope, λ_f^{\parallel} la conductivité longitudinale de la fibre, et Φ la fraction volumique de fibres.

I.2.1.b Cas des stratifiés – prise en compte de l'orientation des plis

Après avoir précisé la conductivité longitudinale d'un pli seul d'UD, nous pouvons passer à un niveau de complexité supérieure, en l'occurrence la modélisation de la conductivité d'un pli de renfort tissé. Si on prend l'exemple d'un tissu sergé 2-2 (Figure III- 11), Kulkarni *et al.* [43] ainsi que Lecointe [18,19] proposent de décomposer ce pli en une somme de deux plis d'UD qui le composent.

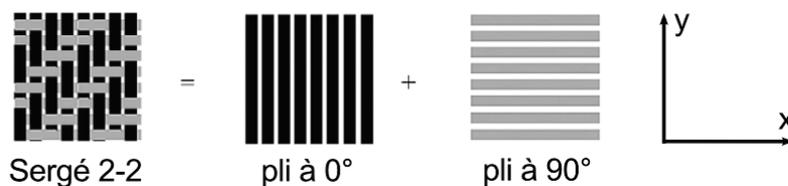


Figure III- 11 : Décomposition d'un sergé en une somme de plis d'UD

Les conductivités planes du pli de renfort tissé sont des projections suivant x et y en tenant compte de l'angle θ formé entre le pli et l'axe considéré. On note au passage que la conductivité transverse du pli n'est bien sûr pas affectée.

$$\lambda_{x,i} = \lambda_1 |\cos \theta_i| + \lambda_2 |\sin \theta_i| \quad \text{Eq. (3.14)}$$

$$\lambda_{y,i} = \lambda_1 |\sin \theta_i| + \lambda_2 |\cos \theta_i| \quad \text{Eq. (3.15)}$$

$$\lambda_{z,i} = \lambda_2 \quad \text{Eq. (3.16)}$$

Connaissant la conductivité plane d'un pli pris séparément, il faut maintenant tenir compte de la séquence d'empilement du stratifié pour obtenir la conductivité plane du matériau composite à l'échelle macroscopique. Pour ce faire, on utilise un modèle de résistances thermiques en parallèle qui va moyenner la conductivité plane sur les N plis du composite.

$$\lambda_d = \frac{1}{N} \left(\sum_{i=1}^N \lambda_{d,i} \right)_{d=x,y} \quad \text{Eq. (3.17)}$$

A titre d'exemple, la conductivité d'un stratifié bidirectionnel constitué de n_1 plis orientés à θ et n_2 plis orientés à un angle Ω s'écrit alors :

$$\lambda_{eff}^c = p_\theta (\lambda_1 |\cos \theta| + \lambda_2 |\sin \theta|) + p_\Omega (\lambda_1 |\cos \Omega| + \lambda_2 |\sin \Omega|) \quad \text{Eq. (3.18)}$$

$$\text{avec } p_\theta = \frac{n_1}{n_1 + n_2} \text{ et } p_\Omega = \frac{n_2}{n_1 + n_2} \quad \text{Eq. (3.19)}$$

Le modèle parallèle et ses extensions sont très simples et fournissent généralement des résultats en accord avec l'expérience, c'est la raison pour laquelle on trouve un nombre relativement faible de travaux concernant la conductivité plane.

I.2.2 Modélisation de la conductivité thermique transverse

Contrairement à la conductivité des composites UD dans le sens des fibres pour laquelle il existe un modèle simple, la prédiction de la conductivité transverse est beaucoup plus controversée. La plupart du temps basées sur l'analogie du potentiel électrique, un nombre considérable d'approches sont disponibles dans la littérature, allant de la plus simple à la plus compliquée. Cependant, les réponses de ces différents modèles sont assez éloignées les unes des autres, particulièrement pour les forts taux de fibres, comme en témoigne la figure suivante [15, 20–23].

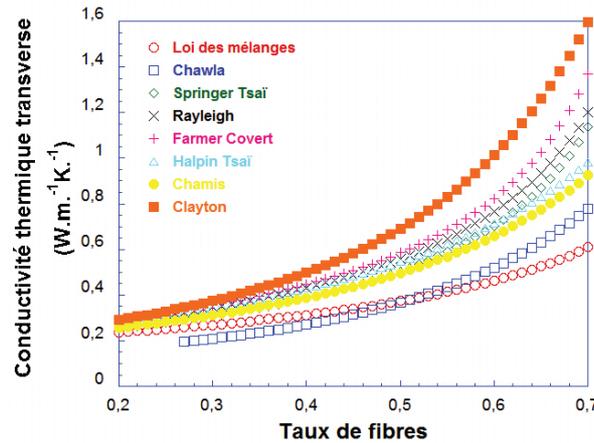


Figure III- 12 : Comparaison de plusieurs modèles de conductivité transverse en fonction du taux de fibres.

Par conséquent, seuls les modèles que nous avons jugés les plus satisfaisants sont décrits dans la suite.

I.2.2.a Composites unidirectionnels

La conductivité transverse λ_2 (voir Figure III- 10) d'un composite unidirectionnel peut être décrite elle aussi par analogie avec le potentiel électrique. Tandis que la conductivité plane λ_1 suivait un modèle de résistances en parallèle, la conductivité transverse λ_2 peut être approchée par un modèle de résistances en série [43], dans lequel l'inverse de la conductivité équivalente est égal à la somme des inverses des conductivités des composants, pondérés par leurs fractions volumiques respectives.

$$\frac{1}{\lambda_2} = \frac{1 - \Phi}{\lambda_r} + \frac{\Phi}{\lambda_f} \quad \text{Eq. (3.20)}$$

La section d'un UD par un plan vertical équivaut à un domaine dans lequel des disques (représentant les fibres) sont aléatoirement repartis. La conductivité transverse λ_2 (voir Figure III- 10) d'un composite unidirectionnel peut donc être décrite par des modèles d'inclusions de disques dans une matrice homogène et isotrope. C'est le cas des modèles analytiques de Maxwell-Eucken (Eq. 3.18) et de Charles & Wilson (Eq. 3.19), construits également tous deux à partir de l'analogie du potentiel électrique. Les hypothèses de ces modèles sont les suivantes :

- Les inclusions sont des disques homogènes d'un diamètre unique
- Leur répartition est aléatoire
- Les interactions entre les inclusions ne sont pas prises en compte
- La matrice est homogène et isotrope

$$\lambda_{2M} = \lambda_r \left(\frac{\lambda_f + 2\lambda_r + 2\Phi(\lambda_f - \lambda_r)}{\lambda_f + 2\lambda_r - \Phi(\lambda_f - \lambda_r)} \right) \quad \text{Eq. (3.21)}$$

$$\lambda_{2CW} = \lambda_r \left[\frac{\lambda_f^\perp (1 + \Phi) + \lambda_r (1 - \Phi)}{\lambda_f^\perp (1 - \Phi) + \lambda_r (1 + \Phi)} \right] \quad \text{Eq. (3.22)}$$

λ_f^\perp représente la conductivité transverse intrinsèque de la fibre, c'est-à-dire sa propre conductivité radiale. Quand il s'agit de fibres de verre, $\lambda_f^\perp = \lambda_f^\parallel$ car ce matériau est isotrope. En revanche, la fibre de carbone étant anisotrope, il faut bien veiller lors du calcul à ne pas confondre les deux valeurs, qui sont relativement éloignées.

Ces modèles ont donné de très bons résultats dans des travaux que nous avons publiés en 2012 [45]. La conductivité thermique d'un composite carbone-époxy a été déterminée expérimentalement dans 3 états typiques d'un procédé RTM : préforme sèche, composite liquide et composite réticulé. Les résultats avaient été confrontés avec succès à des modèles modifiés de Maxwell-Eucken et Charles & Wilson. La Figure III- 13 présente un aperçu de ces résultats.

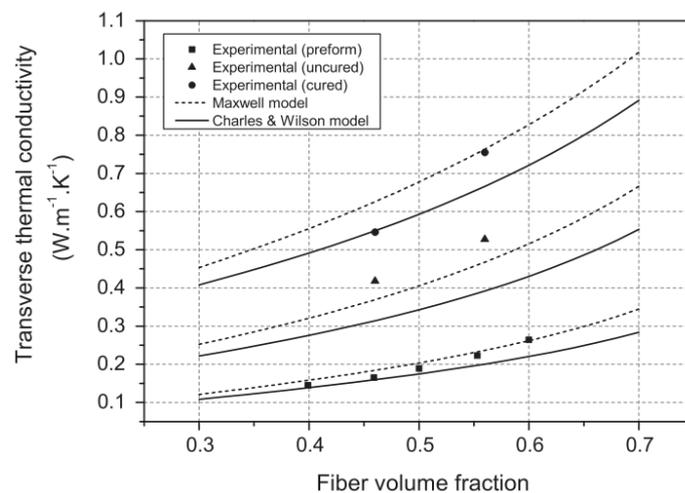


Figure III- 13 : Comparaison des conductivités expérimentales de la préforme sèche, du composite cru et du composite réticulé avec les modèles de Maxwell-Eucken et de Charles & Wilson pour un composite carbone-époxy [45].

Dans le développement de ces équations, les interactions entre particules sont négligées. De ce fait, les équations ne sont valables que pour des taux de renfort faibles. La prédiction de la conductivité devient donc imprécise lorsque $\Phi \rightarrow \Phi_{max}$.

Prise en compte de facteurs géométriques

Certains modèles incluent des facteurs de forme qui tiennent compte de la géométrie réelle du milieu poreux. Les modèles d'Halpin et Tsai [50] et de Lewis et Nielsen [51] font partie de cette catégorie et donnent des résultats satisfaisants. Le premier est obtenu par analogie avec le module élastique et s'écrit :

$$\lambda_{2HT} = \frac{1 + \zeta\eta\Phi}{1 - \eta\Phi} \quad \text{Eq. (3.23)}$$

$$\text{avec } \eta = \frac{\frac{\lambda_f}{\lambda_r} - 1}{\frac{\lambda_f}{\lambda_r} + \zeta} \quad \text{Eq. (3.24)}$$

$$\text{et } \ln \zeta = \sqrt{3} \ln \left(\frac{d}{t} \right) \quad \text{Eq. (3.25)}$$

d/t est le ratio d'aspect associé aux fibres (largeur d et épaisseur t). Si les fibres sont parfaitement circulaires, on se ramène au cas particulier où $\zeta=1$.

Lewis et Nielsen vont un peu plus loin en modifiant le modèle d'Halpin et Tsai afin d'inclure un facteur de forme et un facteur d'orientation des fibres.

$$\lambda_{2LN} = \lambda_r \left[\frac{1 + AB\Phi}{1 - B\Phi\psi} \right] \quad \text{Eq. (3.26)}$$

$$\text{avec } \psi = 1 + \left(\frac{1 - \Phi_m}{\Phi_m^2} \right) \Phi \quad \text{Eq. (3.27)}$$

$$B = \frac{\frac{\lambda_f}{\lambda_r} - 1}{\frac{\lambda_f}{\lambda_r} + A} \quad \text{Eq. (3.28)}$$

A est une constante qui dépend de la géométrie du renfort et de la direction du flux de chaleur, elle est donnée par des tables. Φ_m est la compacité maximale obtenue avec le renfort considéré (dans le cas de cylindres 1D, cette valeur théorique est de 0,907).

Enfin, on peut également citer plus récemment le modèle de Pal [52], qui lui aussi prend en compte la difficulté d'empilement en faisant intervenir Φ_m , la compacité théorique maximale. Notons toutefois que cette équation présente l'inconvénient d'avoir besoin d'être résolue numériquement puisqu'il s'agit d'une relation implicite.

$$\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_r} \right)^{\frac{1}{3}} \left(\frac{\lambda - 1}{\lambda - \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_r} \right)} \right) = \left(1 - \frac{\Phi}{\Phi_m} \right)^{-\Phi_m} \quad \text{Eq. (3.29)}$$

I.2.2.b Cas des stratifiés

De la même manière que pour la conductivité longitudinale, on assemble les N plis du renfort pour obtenir le composite macroscopique en employant un modèle de résistances thermiques en série. La conductivité transverse du stratifié est donnée par :

$$\lambda_z = \frac{1}{N} \left(\sum_{i=1}^N \frac{1}{\lambda_{z,i}} \right)^{-1} \quad \text{Eq. (3.30)}$$

Si tous les plis sont identiques (ce qui est le cas la plupart du temps), alors il vient directement que $\lambda_z = \lambda_2$.

I.2.2.c Cas des renforts tissés – prise en compte de l’ondulation des fibres

La plupart des renforts tissés sont caractérisés par l’ondulation des mèches qui les composent, au contraire des UD pour lesquels les fibres sont toutes strictement perpendiculaires à l’axe z. Dans une telle configuration, chaque mèche passe en effet au-dessus puis en-dessous d’autres, si bien que sa trajectoire est une courbe périodique. Cet effet peut être pris en compte afin d’apporter une correction à la conductivité transverse du matériau, en supposant que cette ondulation est sinusoïdale.

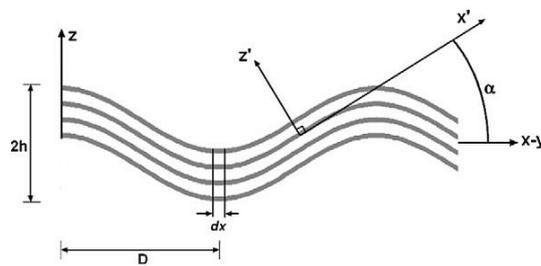


Figure III- 14 : Angle d’ondulation entre une mèche et le plan x-y.

Un angle d’ondulation moyen $\tilde{\alpha}$ est défini par [45], qui est fonction de la géométrie du renfort. L’équation (3.32) présente la correction apportée à la conductivité transverse en tenant compte de cet angle.

$$\tilde{\alpha} = \tan^{-1} \left(\frac{2h}{D} \right) \quad \text{Eq. (3.31)}$$

$$\lambda_z = \lambda_1 |\sin \tilde{\alpha}| + \lambda_2 |\cos \tilde{\alpha}| \quad \text{Eq. (3.32)}$$

II Caractérisation expérimentale des matériaux de l’étude.

Comme nous l’avons dit précédemment, l’objectif principal de l’étude est de parvenir à estimer par une étude thermique le profil de saturation du renfort de fibres de verre par un liquide modèle. Pour y parvenir, la connaissance précise des propriétés thermiques de ce matériau en fonction de la saturation est un prérequis indispensable. La détermination de la conductivité thermique de matériaux composites est délicate, comme l’a montré une campagne de tests croisés menée conjointement par onze laboratoires en 2005 [53]. En effet, les résultats de ce test à l’aveugle ont montré une dispersion de plus de 40% des valeurs expérimentales. Dans la suite, nous allons donc nous attacher à déterminer expérimentalement les propriétés thermiques des matériaux modèles que nous avons choisis.

Au vu de la littérature actuelle, il n’existe aucune technique fiable permettant de fabriquer des plaques composites de porosité contrôlée à façon. De plus, si l’on voulait mesurer les propriétés thermiques d’un matériau en fonction de sa saturation, il faudrait s’assurer de pouvoir contrôler à la fois les taux de

macro-vides et de micro-vides, ce qui n'est malheureusement pas réalisable aujourd'hui. Pour contourner ce problème, on fait appel à des modèles qui seront détaillés plus loin. L'approche expérimentale reste toutefois extrêmement précieuse pour fournir des valeurs dans les cas limites, c'est-à-dire lorsque la saturation vaut 0 (préforme sèche) ou 1 (composite totalement saturé). Dans cette partie, un large panel de méthodes de caractérisation est donc présenté et employé pour déterminer le tenseur de conductivité thermique et la chaleur spécifique du matériau modèle pour ces cas limites.

Le renfort utilisé est un renfort unidirectionnel de fibres de verre 2K de 646 g/m^2 . Le liquide est un mélange de $87\%_m$ de glycérol et de $12,6\%_m$ d'eau distillée auquel on ajoute une faible proportion de tensioactif. Ces matériaux sont détaillés précisément dans le chapitre suivant, dans la partie relative au dispositif expérimental d'injection. Pour davantage d'informations, le lecteur est invité à consulter le paragraphe II.4 du chapitre 4.

Le tableau suivant regroupe l'ensemble des méthodes de caractérisation qui vont être utilisées dans les parties suivantes.

	λ_x	λ_z	C_p
Liquide seul	• Sonde C-Therm		• DSC
Préforme sèche S=0	• Copernic	• Plaque chaude gardée • Sonde Hot Disk	• DSC • Chauffeurette instrumentée
Composite saturé S=1	• Copernic • Chauffeurette instrumentée	• Sonde Hot Disk • Chauffeurette instrumentée	

Tableau 2 : Panorama des méthodes employées pour la détermination des propriétés thermiques du composite.

Nous avons vu dans la partie bibliographique le principe de la plupart de ces méthodes. Seules les méthodes dites de la « chauffeurette instrumentée » et « Copernic » n'ont pas été décrites, car elles ont été développées au Laboratoire de Thermocinétique. Leurs descriptions font l'objet des deux parties suivantes.

II.1 Présentation des bancs expérimentaux développés au laboratoire

II.1.1 Mesure de la conductivité plane – Méthode Copernic

La méthode Copernic (de l'acronyme **CO**nductivité **P**lane par **E**chelon en **R**efroidisseme**N**t par méthode **I**nverse et appliquée aux **C**omposites) est un banc expérimental développé dans la thèse de Lecointe [44] qui permet l'estimation de la conductivité plane de matériaux composites. Son atout majeur est de pouvoir le faire sur des préformes sèches, sur des composites imprégnés liquides, et sur des composites réticulés. Il est constitué d'un petit moule RTM fait de PTFE. Il est composé de deux moitiés symétriques et permet de fabriquer des plaques de dimensions $60 \times 70 \text{ mm}^2$ et d'épaisseur 10 mm . Dans chaque moitié de ce moule est insérée une pièce de cuivre, qui est en contact direct avec

l'extrémité de la pièce moulée. Ce moule est maintenu fermé entre les plateaux d'une presse pneumatique, sur lesquels un cycle de température peut être imposé. De plus, une tôle d'aluminium d'un millimètre d'épaisseur couvre l'ensemble du moule, afin d'uniformiser la température en surface. Afin de réduire les pertes thermiques entre le moule et le milieu ambiant, le moule est isolé par plusieurs centimètres de laine de verre. Un schéma du moule et une coupe de celui-ci sont représentés respectivement en Figure III- 15 et Figure III- 16.

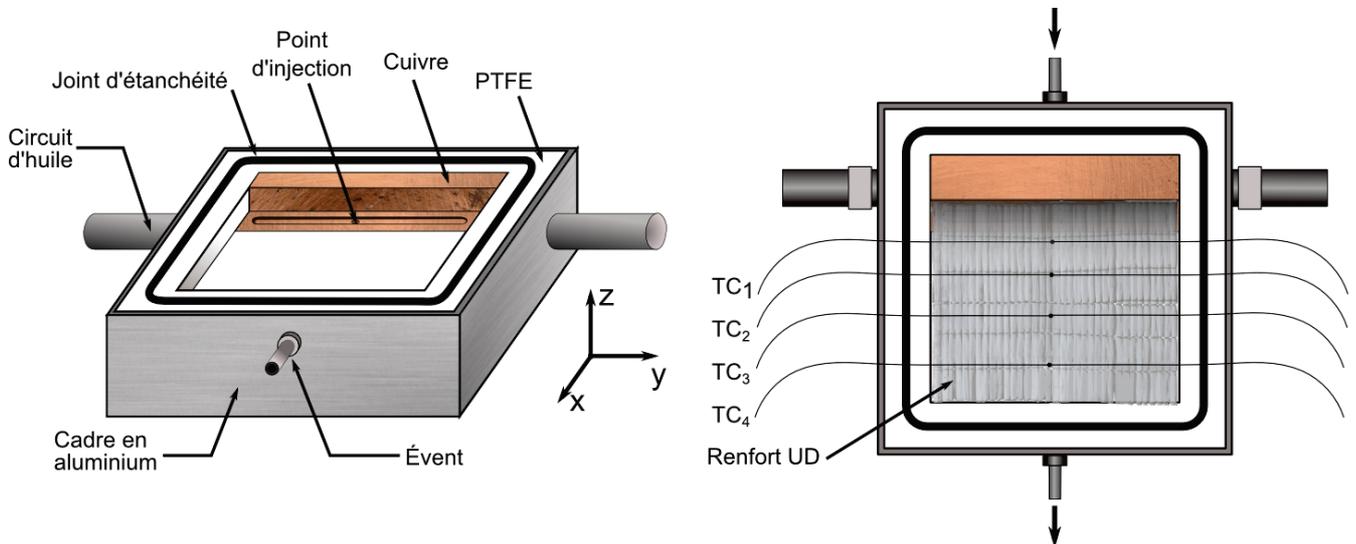


Figure III- 15 : Schéma du moule vide (à gauche) et instrumenté (à droite).

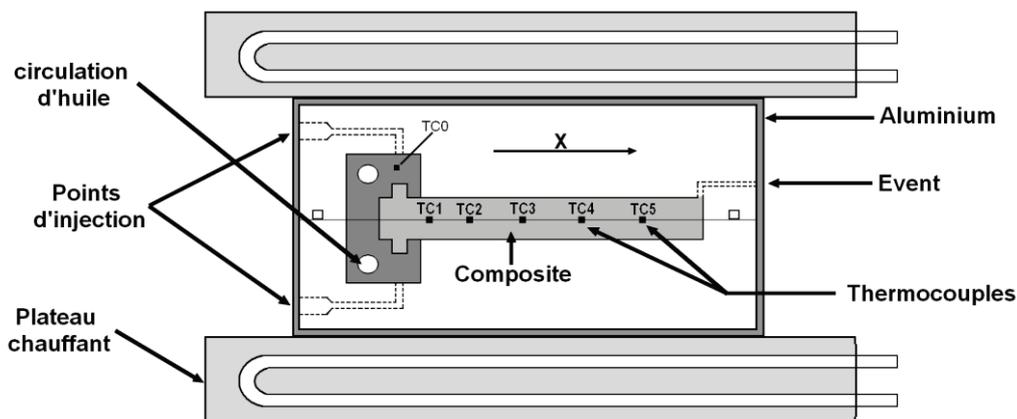


Figure III- 16 : Coupe du moule instrumenté placé entre les plateaux chauffants

L'objectif est de créer un échelon de température dans l'insert en cuivre, pour forcer les transferts de chaleur dans le plan. Cet échelon est obtenu en faisant brutalement circuler un fluide caloporteur plus chaud ou plus froid que le moule dans un canal situé au cœur de l'insert. La température du fluide, qui est de l'huile dans notre cas, est régulée avec précision par un thermorégulateur Lauda. Comme le moule est plus isolant que le composite, les transferts de chaleur ont lieu préférentiellement entre le composite et l'insert en cuivre. De cette manière, on obtient un champ de température quasi-uniforme dans l'épaisseur, ce qui implique des transferts de chaleur contraints dans le sens longitudinal.

Cinq micro-thermocouples de type K sont placés à mi-épaisseur de la préforme, dans la direction de propagation de l'échelon de température (axe x sur la Figure III- 16). Ils sont placés de façon à ce que leurs fils soient placés dans les isothermes. La température de l'insert de cuivre est également mesurée par un thermocouple noté TC₀. Lorsque le moule est placé sous presse, une pompe à vide connectée à l'évent permet l'injection d'une résine.

Protocole

Les cycles de mesures que nous avons suivi peuvent se décomposer de la manière suivante :

1. Préchauffage du moule et de la préforme à la température de mesure souhaitée.
2. Mesure sur la préforme sèche : un échelon de température est appliqué par ouverture de la vanne contrôlant la circulation d'huile
3. Préparation de l'injection du fluide (dégazage du fluide par mise sous vide, tirage au vide de la préforme)
4. Injection du fluide dans le moule par mise sous pression et tirage au vide simultanément.
5. Homogénéisation de la température du moule
6. Mesure sur le composite saturé (similaire à l'étape 2).

Modélisation des transferts de chaleur

Les transferts de chaleur sont modélisés à l'aide du logiciel d'éléments finis Comsol Multiphysics par une équation de conduction en 2D. Une étude préalable a permis de montrer que les transferts se déroulaient majoritairement dans la section du moule, telle que représentée sur la Figure III- 16. En revanche, elle a également montré que les effets 3D ne pouvaient plus être négligés après environ 700 secondes. L'identification est donc limitée aux 500 premières secondes de l'expérience. Le domaine 2D utilisé et les conditions aux limites appliquées sont représentées en Figure III- 17.

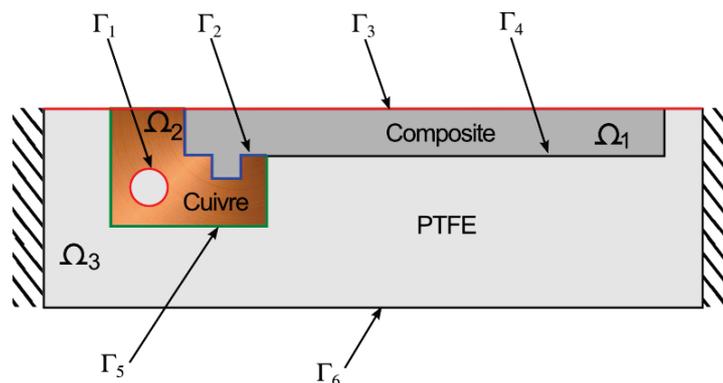


Figure III- 17 : Domaine 2D utilisé pour la simulation des transferts de chaleur

Le moule est supposé parfaitement isolé sur les parois latérales. En raison de la très grande diffusivité de l'élément en cuivre, la température imposée sur la paroi du canal (Γ_1) est considérée égale à la température mesurée par le thermocouple TC₀. La température sur la face inférieure du Téflon (Γ_6) est considérée égale à la température imposée sur les plateaux chauffants. Trois résistances thermiques de

contact sont prises en compte aux frontières ($\Gamma_2, \Gamma_4, \Gamma_5$). Les transferts de chaleur sont modélisés par les équations suivantes, en sachant que T^a correspond au champ de température dans la pièce composite, T^b à celui dans l'insert en cuivre, et T^c dans le moule en Téflon®.

Dans la pièce composite :

$$(\rho Cp)_{comp} T_t^a = \lambda_x T_{xx}^a + \lambda_z T_{zz}^a \quad \text{dans } \Omega_1, t > 0 \quad \text{Eq. (3.33)}$$

$$-\lambda T_n^a = (T^a - T^b)/R_t \text{ sur } \Gamma_2, \quad t > 0 \quad \text{Eq. (3.34)}$$

$$-\lambda T_n^a = (T^a - T^b)/R_{ptfe_{comp}} \text{ sur } \Gamma_4, \quad t > 0 \quad \text{Eq. (3.35)}$$

$$-\lambda T_n^a = 0 \text{ sur } \Gamma_3 \quad \text{Eq. (3.36)}$$

$$T^a = T_{stat}^a \text{ in } \Omega_1, t = 0 \quad \text{Eq. (3.37)}$$

Dans l'insert en cuivre :

$$(\rho Cp)_{cu} T_t^b = \lambda_{cu} \Delta T^b \quad \text{dans } \Omega_2 \quad \text{Eq. (3.38)}$$

$$-\lambda_{cu} T_n^b = (T^b - T^a)/R_t \text{ sur } \Gamma_2, \quad t > 0 \quad \text{Eq. (3.39)}$$

$$-\lambda_{cu} T_n^b = 0 \text{ sur } \Gamma_3, \quad t > 0 \quad \text{Eq. (3.40)}$$

$$-\lambda_{cu} T_n^b = (T^b - T^c)/R_{ptfe_{comp}} \text{ sur } \Gamma_5, \quad t > 0 \quad \text{Eq. (3.41)}$$

$$T^b = T_{C_0} \text{ on } \Gamma_1, \quad t > 0 \quad \text{Eq. (3.42)}$$

$$T^b = T_{stat}^b \text{ in } \Omega_2, \quad t = 0 \quad \text{Eq. (3.43)}$$

Dans le moule en PTFE :

$$(\rho Cp)_{ptfe} T_t^c = \lambda_{ptfe} \Delta T^c \text{ in } \Omega_c, t > 0 \quad \text{Eq. (3.44)}$$

$$-\lambda_{ptfe} T_n^c = (T^c - T^a)/R_{ptfe_{comp}} \text{ sur } \Gamma_4, \quad t > 0 \quad \text{Eq. (3.45)}$$

$$-\lambda_{ptfe} T_n^c = (T^c - T^b)/R_{ptfe_{cu}} \text{ sur } \Gamma_5, \quad t > 0 \quad \text{Eq. (3.46)}$$

$$-\lambda_{ptfe} T_n^c = 0 \text{ sur } \Gamma_3, t > 0 \quad \text{Eq. (3.47)}$$

$$T^b = T_{plateau} \text{ sur } \Gamma_6, t > 0 \quad \text{Eq. (3.48)}$$

$$T^c = T_{stat}^c \text{ in } \Omega_c, t = 0 \quad \text{Eq. (3.49)}$$

Par ailleurs, nous avons montré que les résistances thermiques associées aux frontières Γ_4 et Γ_5 avaient une sensibilité moindre sur les transferts de chaleur que celle sur la frontière Γ_2 . Par conséquent, leur valeur est imposée et seule la résistance thermique de contact entre le cuivre et le composite (Γ_2), dont l'influence est grande, est identifiée.

En résumé, seuls deux paramètres sont à déterminer : la conductivité plane λ_x et la résistance thermique de contact R_t entre le PTFE et le composite. Un critère des moindres carrés est défini sur ces deux paramètres, par comparaison des températures expérimentales et numériques :

$$J(\lambda_x, R_t) = \sum_n \sum_{k=1}^5 (T_k^{n\sim} - T_k^n)^2 \quad \text{Eq. (3.50)}$$

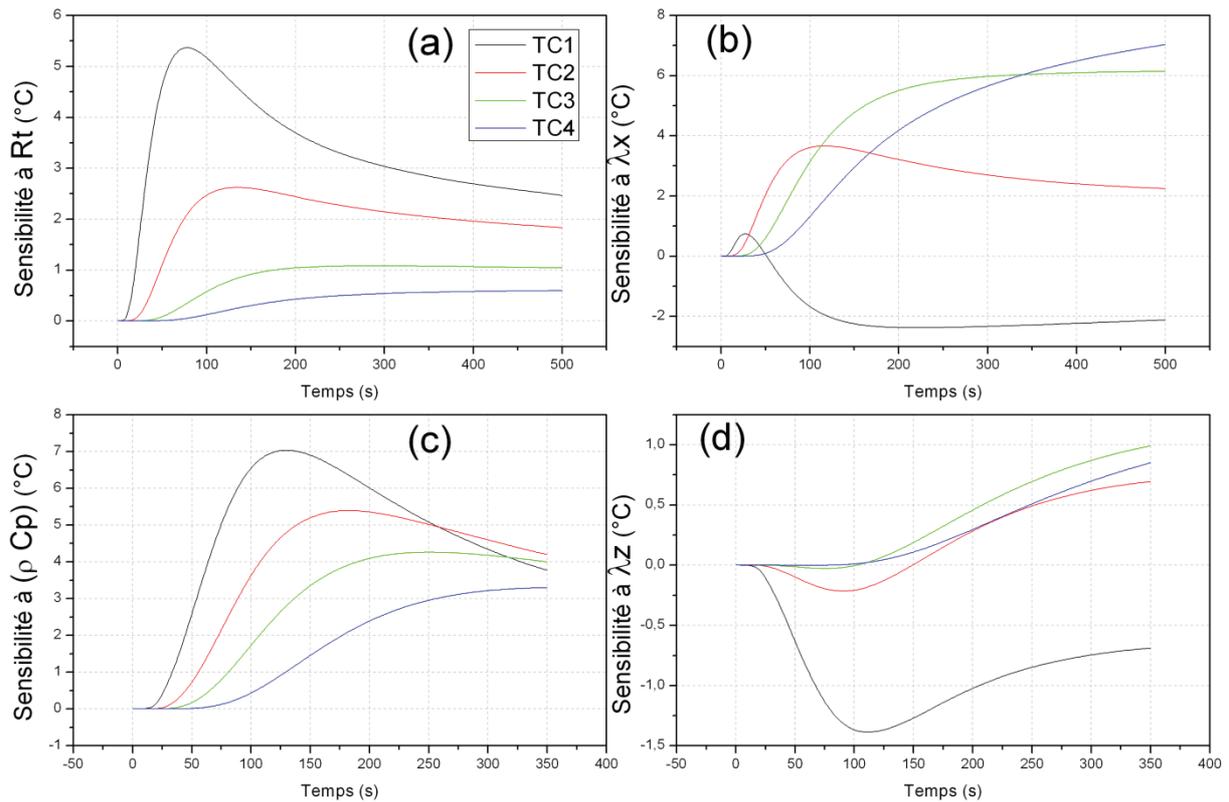


Figure III- 18 : Sensibilité de la température à différents paramètres : à la résistance thermique de contact R_t (a), à la conductivité plane (b), à la capacité calorifique volumique (c), ou encore à la conductivité transverse (d).

Une étude de sensibilité, dont les résultats sont présentés sur la Figure III- 18, a confirmé la sensibilité de la température aux deux paramètres à estimer λ_x et R_t (encadrés a et b). La sensibilité réduite X_w de la température à un paramètre w est exprimée par :

$$X_w = w \frac{\partial T}{\partial w} \quad \text{Eq. (3.51)}$$

De plus, elle montre la grande sensibilité du terme capacitif ρC_p aux températures mesurées (encadré c). Cette valeur devra donc être mesurée *a priori* avec précision. L'encadré (d) nous montre que la sensibilité à la conductivité transverse est proche de zéro, ce qui est le but recherché, sauf pour le premier thermocouple. En effet, celui-ci est placé proche de l'insert en cuivre, là où les transferts sont 2D. Cependant, il est conservé pour estimer la résistance thermique de contact, à laquelle il est très sensible.

II.1.2 Méthode de la chaufferette instrumentée

Cet appareillage dérive des méthodes de source plane transitoire, comme nous l'avons évoqué dans le paragraphe I.1.2.e. Il a été développé au LTN dans la thèse de Matthieu Thomas [11,23] et possède l'avantage de pouvoir mesurer toutes les composantes du tenseur de conductivité, sans connaissance

préalable de la direction des axes principaux, ainsi que la chaleur spécifique. De plus, cette méthode ne nécessite pas l'instrumentation de l'échantillon.

Les travaux menés pendant cette thèse ont eu pour objectif de modifier la configuration du banc expérimental pour permettre la mesure en liquide, et de créer une interface utilisateur rendant les campagnes de mesures plus aisées. En effet, le dispositif était initialement monté dans un bâti imposant, à l'intérieur d'une cloche à vide, et la température de surface était mesurée par un pyromètre. Les principales modifications réalisées ont donc consisté à :

- Remplacer la mesure de la température de surface par pyromètre par plusieurs thermocouples disposés sur une plaque support.
- Permettre la mesure de conductivité en liquide, ce qui implique de développer un moule étanche dans lequel on peut réaliser une injection sous pression.

Le dispositif est constitué d'une chaufferette prise en sandwich entre deux échantillons identiques d'un matériau à caractériser. Des plaques support en acier sont positionnées aux extrémités pour garantir une pression homogène sur l'assemblage ainsi constitué. De fines feuilles de silicone sont ajoutées à chaque interface pour limiter l'effet des résistances thermiques de contact. Enfin, l'étanchéité sur les parois latérales est assurée par un cadre en PMMA muni de joints toriques. L'injection, et donc la mesure en saturé, est rendue possible par un point d'injection fixé sur ce cadre et connecté au circuit d'air comprimé du réseau.

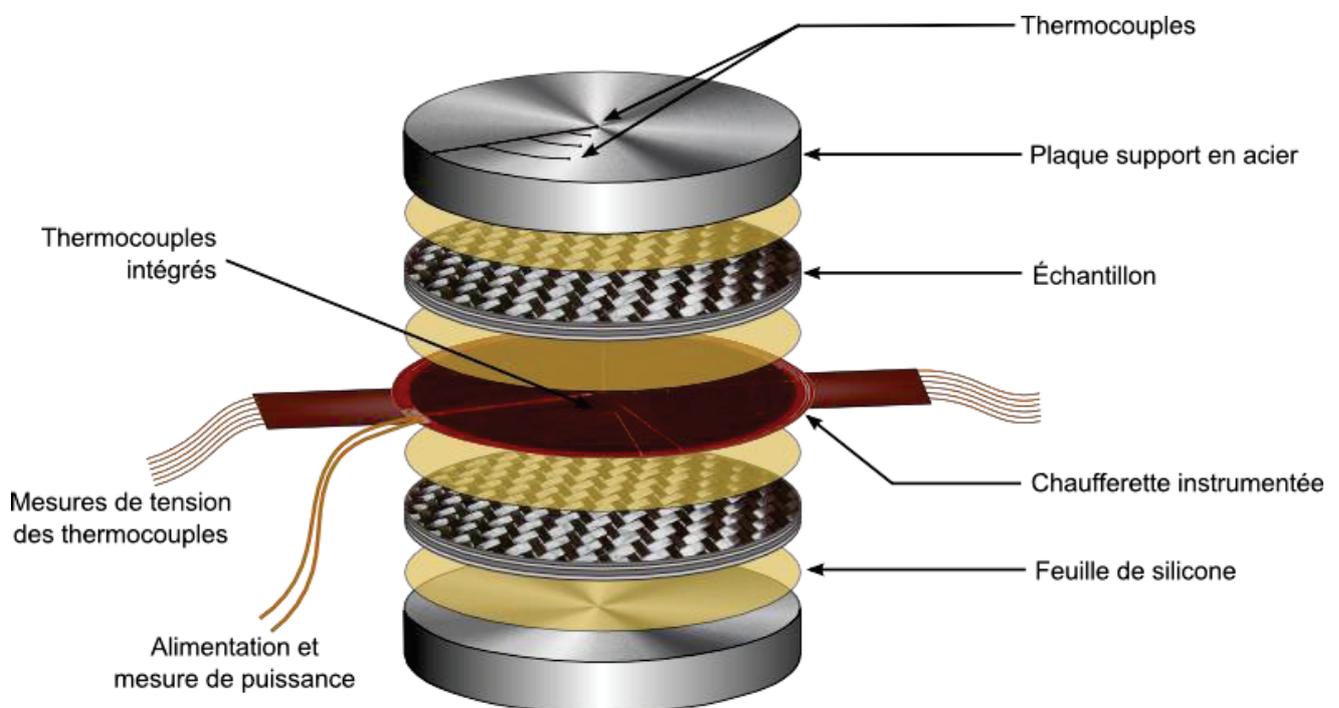


Figure III- 19 : Nouvelle configuration du banc expérimental.

La chaufferette (voir Figure III- 20) joue simultanément le rôle de source thermique et de capteur de température, car 14 thermocouples au total sont répartis à sa surface à différents rayons et différents angles. Sa surface est divisée en deux zones de chauffage, une zone centrale de 10 mm de diamètre, et une zone périphérique qui peuvent être alimentées ensemble ou séparément. Chacune de ces zones est capable de diffuser un flux surfacique homogène.

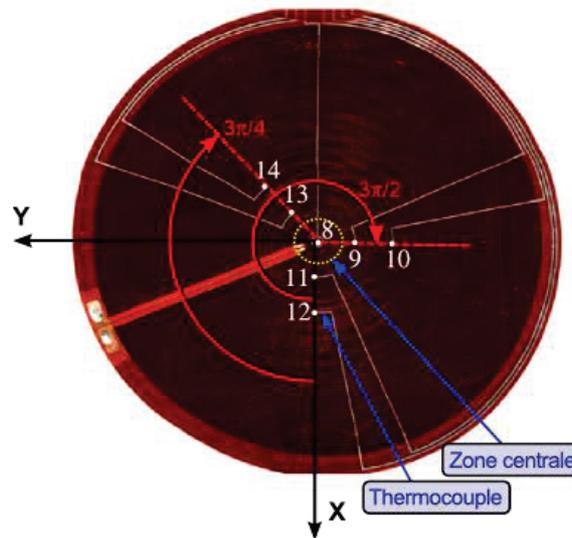


Figure III- 20 : Face inférieure de la chaufferette sur laquelle on distingue la zone centrale de chauffage (en jaune), et les 7 thermocouples à sa surface.

Protocole et méthode d'estimation

Un cycle classique de mesure se compose des étapes suivantes :

1. Configuration chauffage total : les deux zones de la chaufferette sont équilibrées et alimentées simultanément. Les transferts de chaleur sont alors 1D dans l'épaisseur de l'échantillon. L'estimation permet d'identifier λ_z et C_p .
2. Configuration chauffage central : cette fois, seule la zone centrale est alimentée. La valeur de λ_z et du C_p identifiées dans l'étape 1 sont réutilisées dans la modélisation. Les transferts de chaleur sont tridimensionnels et les thermocouples positionnés à différents angles permettent de déterminer les valeurs de λ_x , de λ_y , ainsi que de l'angle θ formé entre le repère de la chaufferette et les directions principales du composite.

L'annexe D présente le schéma électrique de l'interface utilisateur qui a été conçue dans cette étude. Elle possède l'avantage de compter deux circuits disposés en parallèle pour l'alimentation de la chaufferette centrale :

-un premier circuit équilibré, qui est utilisé pour ajuster les densités de flux des deux zones lorsque le chauffage est total

-un second circuit amplifié, qui permet de fournir un maximum de puissance à la chaufferette centrale lorsqu'elle est alimentée seule.

Le montage est placé entre les plateaux d'une presse pneumatique dont la température est imposée et supposée égale à la température enregistrée par les thermocouples situés sur la plaque d'acier. Les parois latérales sont isolées par une épaisse couche de laine de verre, on considère donc dans la simulation que l'isolation est parfaite. Enfin, une source volumique de chaleur égale à la puissance diffusée par effet Joule est imposée sur le domaine correspondant à la chaufferette.

L'enregistrement de l'évolution des températures des différents thermocouples sert de données d'entrée à une méthode d'estimation. La méthode d'évaluation des paramètres est une méthode inverse basée sur la méthode des moindres carrés, dont le principe est de minimiser l'écart quadratique moyen entre le champ de température relevé par les thermocouples sur le système réel et le champ calculé avec une proposition de valeurs de paramètres. Le nouveau vecteur des paramètres $\beta^{(k+1)}$ des paramètres est évalué à chaque nouvelle itération (k+1) par variation des paramètres précédents en prenant en compte les sensibilités du champ de température aux paramètres $X_s^{(k)}$ et l'écart du champ de température $Y_s(\beta^{(k)})$ à la solution physique \tilde{Y} . L'expression de cette variation est donnée par [55]:

$$d\beta^{(k)} = [X_s^{(k)t} X_s^{(k)}]^{-1} X_s^{(k)} (\tilde{Y}_s - Y_s(\beta^{(k)})) \quad \text{Eq. (3.52)}$$

Note: A la suite du changement de configuration expérimental, un nouvel étalonnage des thermocouples de la chaufferette a été réalisé, ainsi que plusieurs expériences de validation de la nouvelle disposition, sur des échantillons de carbone-PEEK orthotropes, et sur un UD de carbone-époxy anisotrope. Ces résultats ont validé définitivement la nouvelle configuration. Des axes d'amélioration ont également été trouvés, comme par exemple l'accroissement du diamètre de la zone de chauffage au centre, qui devrait être fixé à 20 mm dans le futur pour une meilleure précision. Le schéma électrique de l'interface utilisateur développée est visible en Annexe D.

Les résultats obtenus avec ce dispositif, tout comme ceux obtenus avec les autres méthodes sont rassemblés dans la partie suivante.

II.2 Résultats

II.2.1 Mesures des propriétés du liquide seul

II.2.1.a Chaleur spécifique

La chaleur spécifique du liquide modèle a été mesurée à l'aide de la DSC TA Instruments Q200, et les résultats sont présentés sur la Figure III- 21. Le protocole utilisé comprend une ligne de base en montée et descente, sans utilisation de saphirs.

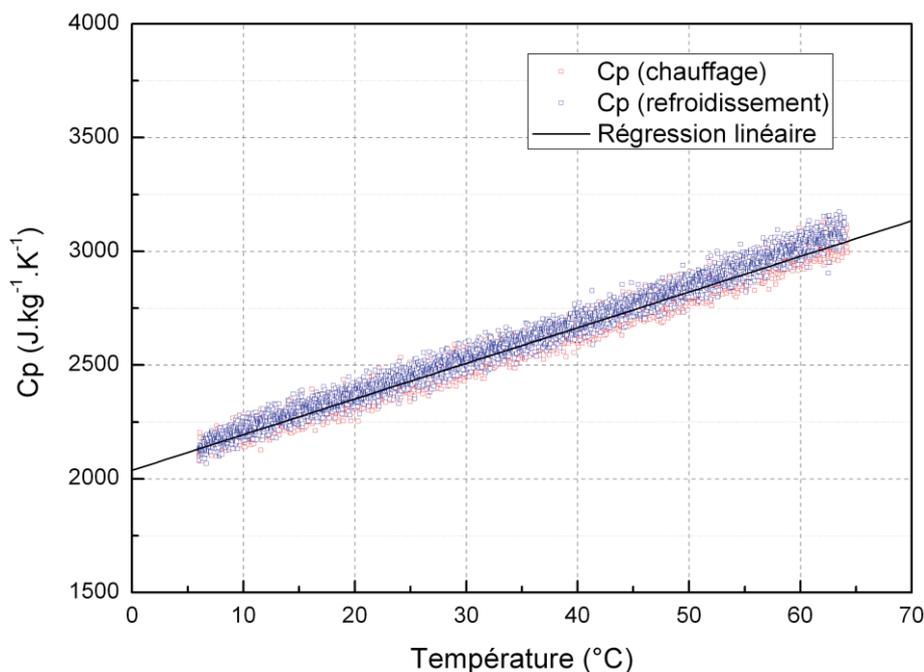


Figure III- 21 : Mesure de la chaleur spécifique du fluide modèle.

On observe une influence significative de la température car la chaleur spécifique augmente de 12% entre 20 et 40°C. L'incertitude de mesure type est évaluée à $56 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ selon une distribution rectangulaire, soit 2,3%.

Remarque : La méthodologie de tous les calculs d'incertitudes présentés dans la suite est issue de la nouvelle norme de 1999 et est présentée en détail en Annexe E.

Sur le domaine de température considéré, l'évolution est linéaire et peut être approchée par l'équation de droite suivante :

$$Cp(T) = 2037 + 15,67 T(^{\circ}\text{C}) \quad \text{Eq. (3.53)}$$

La chaleur spécifique obtenue à 25°C vaut $2429 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Comparons cette valeur avec un modèle de loi des mélanges entre l'eau et la glycérine. Les propriétés des liquides purs issus de la littérature sont données par le Tableau 3.

	Eau	Glycérol
C_p ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	4180	2430
λ ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	0,609	0,285

Tableau 3 : Propriétés de l'eau et du glycérol pur à 25°C (valeurs issues de tables [56])

Le calcul donne :

$C_{p_{liq_{25^{\circ}C}}} = w_1 \cdot Cp_1 + w_2 \cdot Cp_2 = 0,13 * 4180 + 0,87 * 2430 = 2657 J.kg^{-1}.K^{-1}$ soit un écart de 9%. Sachant que la loi des mélanges pour une solution aqueuse admet une erreur maximale de 13% [57], ce résultat est raisonnable.

II.2.1.b Conductivité thermique

Le liquide ne possède qu'une seule composante de conductivité, puisqu'il est bien sûr isotrope. La mesure de cette conductivité thermique a été réalisée par la sonde C-Therm de la société TCi, qui fonctionne sur le principe des sources planes transitoires (voir I.1.2.e). La sonde est retournée dans un béccher contenant le fluide (Figure III- 22), et diffuse donc la source thermique du haut vers le bas, ce qui limite les phénomènes convectifs. Pour réaliser la mesure en fonction de la température, le béccher est plongé dans un thermorégulateur Lauda©. On impose des paliers de température successifs au thermorégulateur, et la mesure est effectuée lorsque l'état stationnaire est atteint.

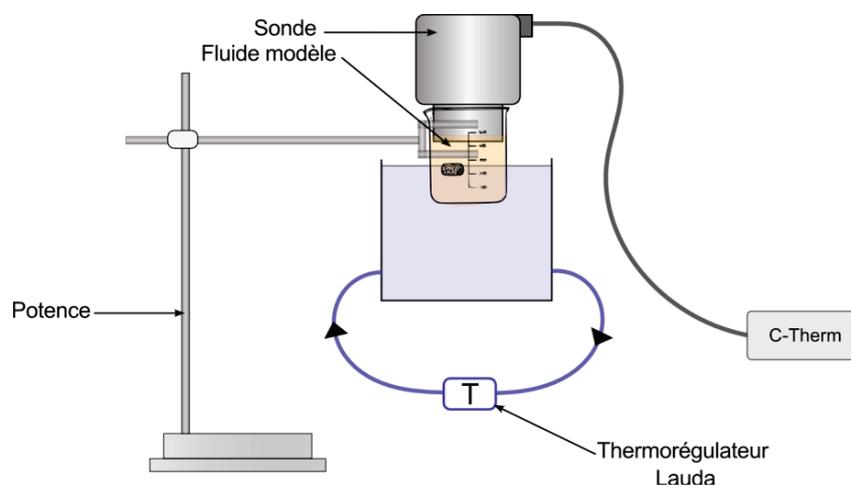


Figure III- 22 : Schéma du dispositif expérimental de mesure de la conductivité en liquide.

Les résultats sont présentés dans la figure suivante. La mesure possède une bonne répétabilité puisqu'on obtient une incertitude de répétabilité de $1,7.10^{-3} W.m^{-1}.K^{-1}$. L'évolution de la conductivité est approchée par un polynôme du second degré.

$$\lambda_{liquide}(T) = 0,34402 - 1,3349.10^{-4} T + 8,082.10^{-6} T^2 \quad \text{Eq. (3.54)}$$

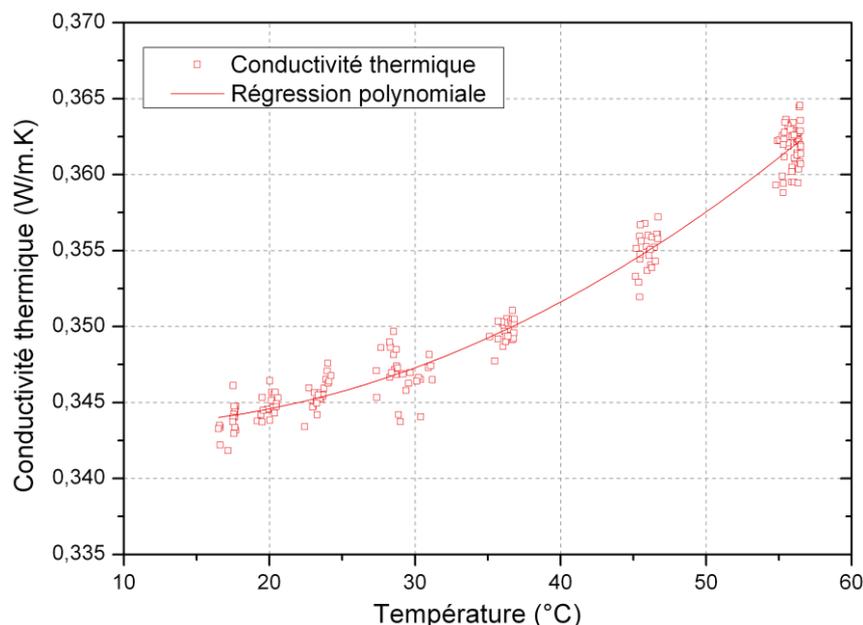


Figure III- 23 : Evolution de la conductivité du mélange liquide en fonction de la température

La régression nous donne une conductivité de $0,346 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ à 25°C . Le contraste entre les conductivités des deux fluides du mélange étant faible, on peut comparer à nouveau ces résultats avec un modèle simple de loi des mélanges, en utilisant les propriétés du Tableau 3.

La loi des mélanges donne :

$$\lambda_{liq_{25^\circ\text{C}}} = \lambda_1 \%_{v1} + \lambda_2 \%_{v2} = 0,609 * 0,158 + 0,285 * 0,842 = 0,336 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$$

Notons au passage que cette fois ce sont les fractions volumiques qui sont utilisées et non plus les fractions massiques. Avec un écart de 3%, la comparaison est satisfaisante puisqu'elle ne représente que $0,01 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ d'erreur.

II.2.2 Mesure des propriétés de la préforme sèche

II.2.2.a Conductivité plane

Méthode Copernic

La mesure est effectuée sur une préforme d'UD dans laquelle les fibres sont toutes orientées suivant la direction x de la Figure III- 16. La mesure est réalisée à 25°C dans un moule initialement isotherme, et la température de l'huile qui circule dans l'insert en cuivre est réglée à 50°C . La méthode inverse permet d'isoler un couple de paramètres minimisant le critère des moindres carrés (Tableau 4). La comparaison des températures expérimentales et numériques de chaque thermocouple à cœur de la préforme est présentée en Figure III- 25.

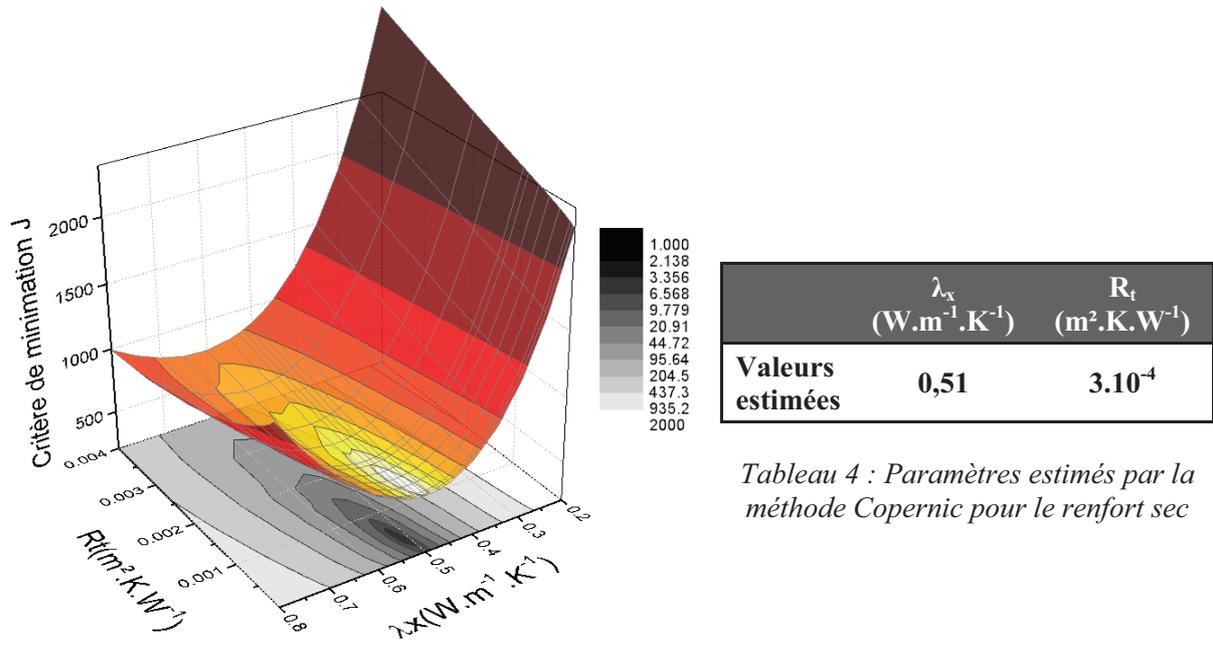


Figure III- 24 : Aperçu du critère de minimisation en fonction des deux paramètres à estimer

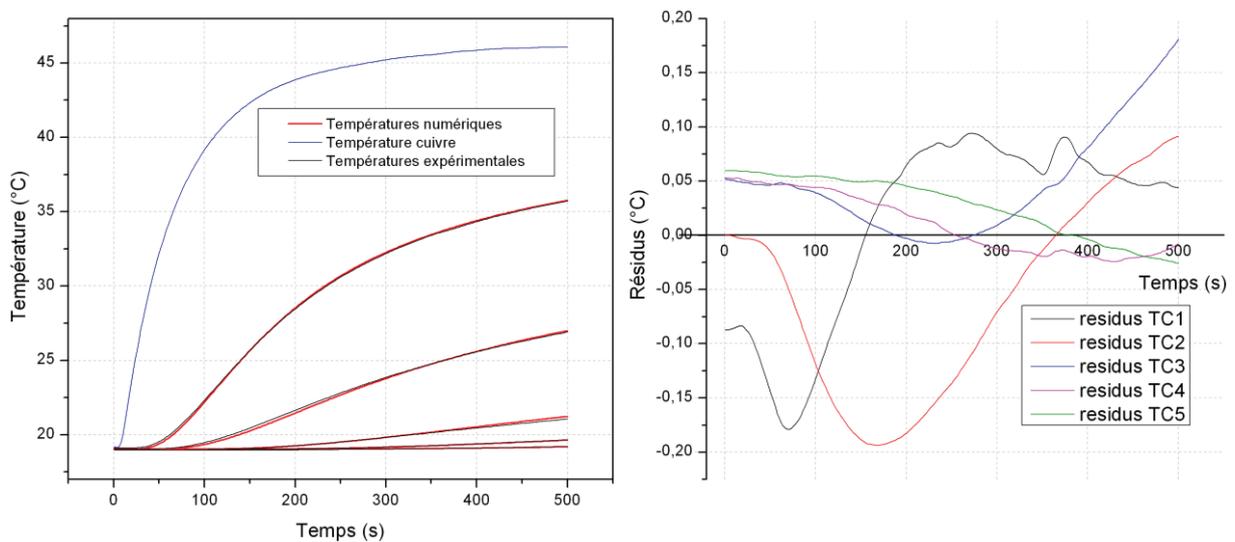


Figure III- 25 : Comparaison des températures expérimentales et calculées pour le renfort sec (à gauche), et résidus associés (à droite)

Les courbes montrent un excellent accord avec des résidus qui restent inférieurs à 0,2°C, ce qui, au vu de la précision typique d'un thermocouple et de celle d'une chaîne d'acquisition (autour de 0,07°C), est très satisfaisant. De plus, la conductivité estimée semble très cohérente quand on la compare au modèle parallèle :

$$\lambda_{x_{S=0}} = \lambda_{air}(1 - \phi) + \lambda_{fibre}\phi = 0,02 * 0,51 + 1 * 0,49 = 0,50 \text{ W.m}^{-1} . \text{K}^{-1} \quad \text{Eq. (3.55)}$$

II.2.2.b Conductivité transverse

Plaque chaude gardée

Pour contrôler le taux de fibres avec précision, la méthode suivante a été employée. Les gardes sont faites en mousse polystyrène et possèdent des plots incompressibles en ABS d'une hauteur bien déterminée dans chacun de leurs coins (Figure III- 26). Cette configuration permet à la fois :

- une isolation parfaite puisque la plaque chaude supérieure vient s'écraser contre la mousse et entrer en contact avec les plots
- l'assurance de connaître l'épaisseur avec précision.

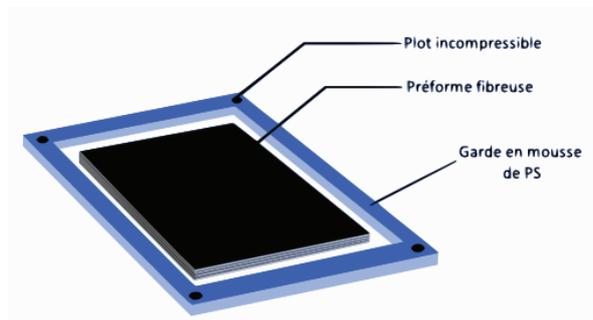


Figure III- 26 : Gardes d'épaisseur contrôlée pour les essais en plaque chaude gardée.

La conductivité transverse est mesurée en fonction du taux volumique de fibres et de la température. Les résultats sont présentés respectivement en Figure III- 27 et Figure III- 28.

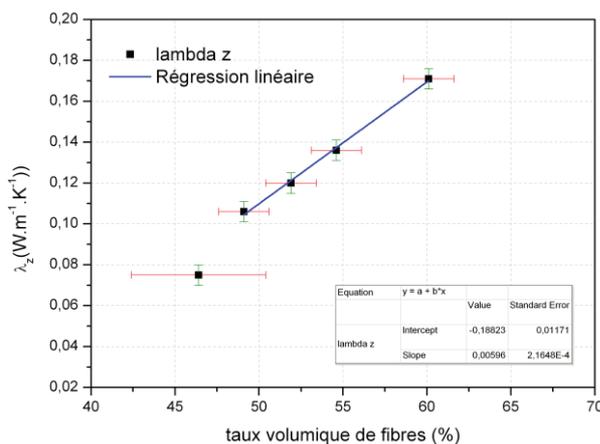


Figure III- 27 : Evolution de la conductivité transverse du renfort sec en fonction du taux volumique de fibres.

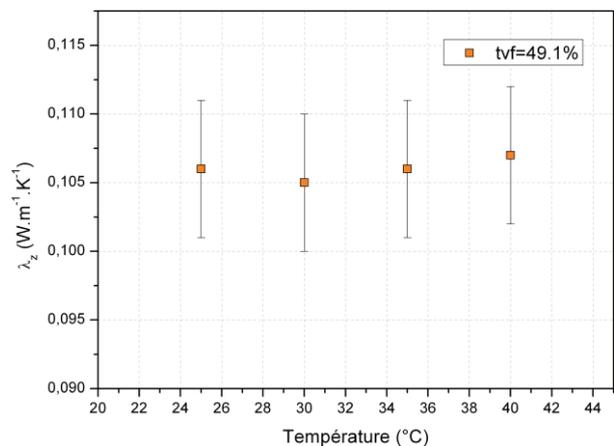


Figure III- 28 : Evolution de la conductivité transverse du renfort sec en fonction de la température

L'évolution de la conductivité transverse de la préforme en fonction du taux de fibres est linéaire sur l'intervalle considéré, selon la droite d'équation :

$$\lambda_x(\phi) = -0,188 + 5,96 \cdot 10^{-3} \phi \quad \text{Eq. (3.56)}$$

Notons que la mesure obtenue pour le taux volumique de fibres le plus faible (46,4%) n'est pas prise en compte. En effet, cette valeur de taux de fibres est tellement faible que le contact entre la préforme et la plaque chaude supérieure n'est plus satisfaisant.

On ne constate pas d'évolution significative de la conductivité transverse du renfort sec en fonction de la température. Ce résultat semble logique puisque ni la conductivité du verre ni celle de l'air ne varient significativement dans cette gamme de température.

Sonde Hot Disk

Afin de réaliser la mesure sur renfort sec et saturé à l'aide du système Hot Disk, un petit dispositif permettant l'injection d'un fluide autour de la sonde est conçu (voir Figure III- 29). Il est constitué de deux demi-moules en aluminium dans lequel on place la préforme. Les dimensions de ce moule sont choisies pour satisfaire les critères géométriques liés au Hot Disk que nous avons évoqué un peu plus tôt (paragraphe I.1.2.e). L'ensemble est plongé dans un thermorégulateur réglé à la température de mesure souhaitée, la grande diffusivité thermique de l'aluminium assurant une mise en régime rapide. Enfin, un point d'injection et un évent permettent d'injecter le fluide dans la cavité pour effectuer les mesures par la suite sur le composite saturé.



Figure III- 29 : Montage expérimental permettant l'injection d'un fluide autour de la sonde Hot Disk. A gauche, les deux demi-moules et leur renfort avec la sonde. A droite, le moule fermé que l'on plonge dans le bain d'un thermorégulateur.

Les résultats de la méthode Hot Disk sur la préforme sèche sont présentés dans la figure ci-dessous. Au contraire de la plaque chaude gardée, on remarque une évolution sensible de la conductivité thermique en fonction de la température. Cette dépendance à la température n'est pas logique et provient certainement d'une imprécision liée à la méthode dont nous n'avons pu trouver la cause. Malgré tout, les résultats s'accordent assez bien car les valeurs trouvées à 25°C (0,106 $W.m^{-1}.K^{-1}$ pour la plaque chaude gardée et 0,99 $W.m^{-1}.K^{-1}$ pour le Hot Disk) ne sont éloignées que de 7%.

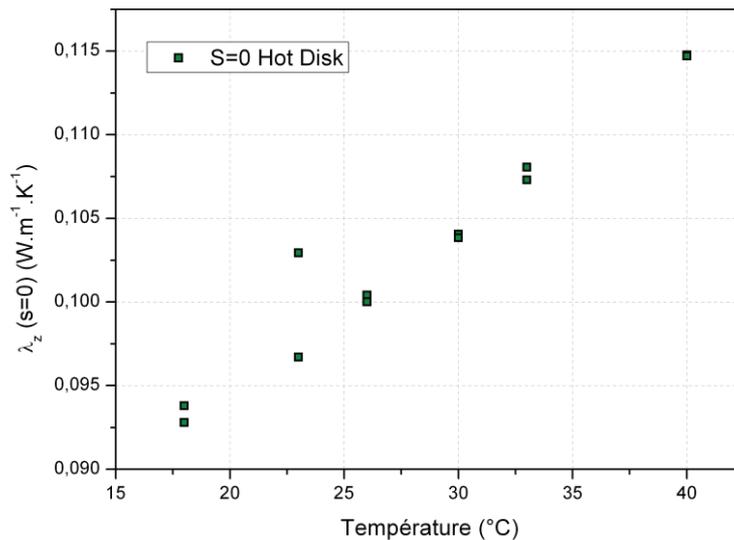


Figure III- 30 : Mesures Hot Disk de la conductivité thermique transverse du renfort sec en fonction de la température.

II.2.3 Mesure des propriétés du composite saturé

II.2.3.a Conductivité plane

Pour toutes les méthodes, un soin particulier est apporté à l’injection du fluide dans la préforme de verre. En effet, il est très important de ne pas former de bulles pendant l’injection, car les mesures doivent se faire à saturation maximale. Nous avons remarqué que le tirage au vide provoquait la formation de bulles d’air dans le mélange, en raison de la pression qui passe en dessous de la pression de vapeur saturante du fluide modèle. Aussi, les injections sont réalisées en imposant simultanément une pression de 500 mbar en amont, et un vide modéré en aval.

Méthode Copernic

Les paramètres estimés sont présentés dans le tableau suivant. La résistance thermique de contact est diminuée d’un ordre de grandeur par rapport au cas de la préforme sèche. Ce résultat est cohérent puisque le contact des mèches sur un élément métallique est bien moins bon que celui d’un liquide.

	$\lambda_x (W.m^{-1}.K^{-1})$	$R_t (m^2.K.W^{-1})$
Valeurs estimées	0,62	1.10^{-5}

Tableau 5 : Paramètres estimés pour le composite saturé

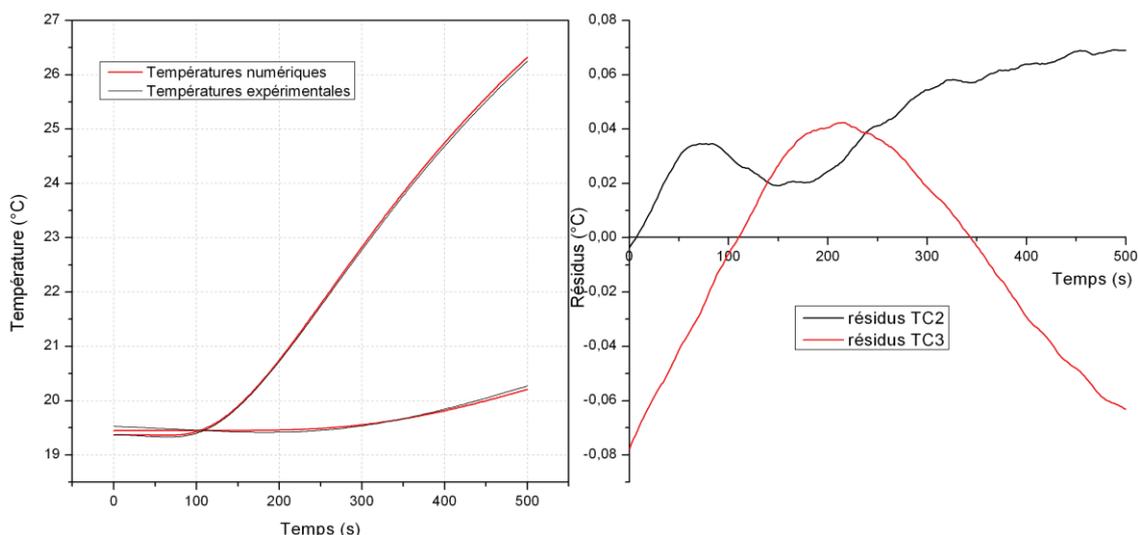


Figure III- 31 : Comparaison des températures expérimentales et calculées pour le composite saturé (à gauche) et résidus associés (à droite).

Remarque: Au cours de l'injection, des thermocouples ont été déplacés légèrement par le mouvement du liquide pénétrant dans la préforme, c'est la raison pour laquelle seuls deux thermocouples ont servi à l'estimation dans cette expérience.

Chaufferette instrumentée

Afin de déterminer les conductivités thermiques planes (λ_x et λ_y), la chaufferette instrumentée est utilisée dans la configuration où seul son centre est activé. Les échanges de chaleur sont donc tridimensionnels et les isothermes forment un ellipsoïde. Les plis d'UD sont empilés suivant l'axe x de la Figure III- 20. L'évolution de la température des thermocouples suivants est enregistrée :

-TC8 : situé au centre de la chaufferette

-TC9 : thermocouple situé à 10 mm du centre dans la direction perpendiculaire aux fibres

-TC11 : thermocouple situé à 10 mm du centre dans la direction des fibres.

La méthode numérique permet d'estimer simultanément la conductivité λ_x , dans le sens des fibres, et λ_y , dans le sens perpendiculaire aux fibres. La Figure III- 32 présente l'évolution des températures et la comparaison avec le modèle numérique.

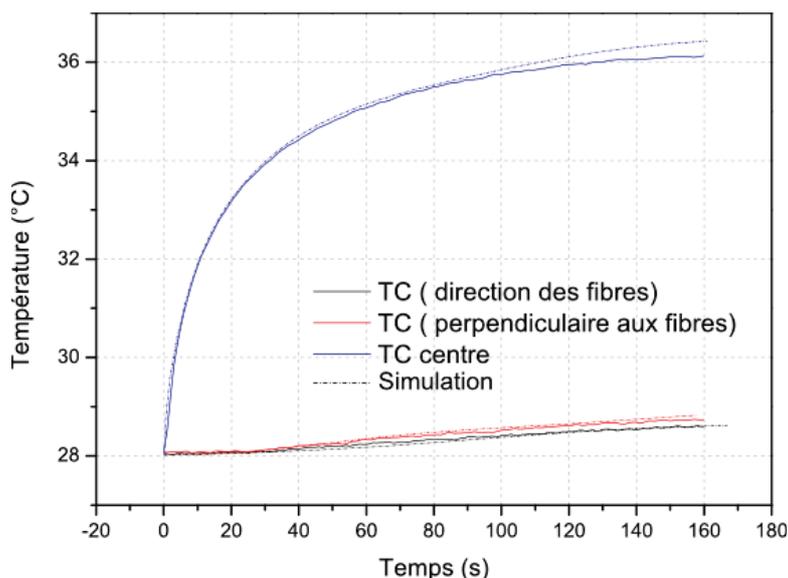


Figure III- 32 : Evolution des températures du centre de la chauffelette et dans les deux directions x et y de l'UD

Les valeurs de conductivité estimées sont rassemblées dans le Tableau 6 ci-dessous. En raison de la faible anisotropie du matériau, on ne constate qu'une « petite » différence entre les deux valeurs. De plus, la conductivité λ_y est très proche de la conductivité transverse λ_z , ce qui est tout à fait logique.

	λ_x (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	λ_y (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)
Valeurs estimées	0,68	0,58

Tableau 6 : Conductivités planes estimées en saturé à 25°C.

II.2.3.b Conductivité transverse

Sonde Hot Disk

L'évolution de la conductivité transverse saturée est tracée en fonction de la température en Figure III-33. Celle-ci s'accroît sensiblement avec la température, et peut être approchée par l'équation de droite suivante:

$$\lambda_{zS=1}(T) = 0,55 + 1,76 \cdot 10^{-3} T \quad \text{Eq. (3.57)}$$

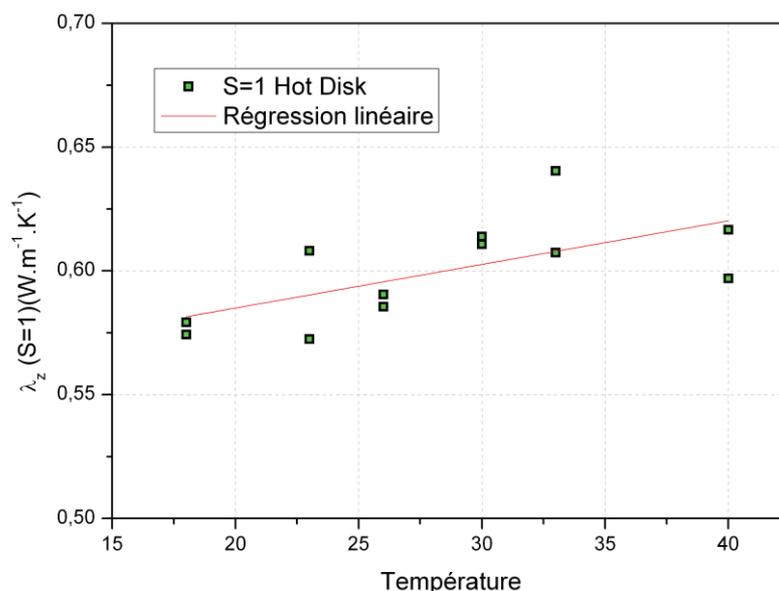


Figure III- 33 : Mesures Hot Disk sur échantillon composite imprégné en fonction de la température.

Alors que les mesures sur préforme sèche laissaient apparaître une évolution anormale de la conductivité, cette augmentation de la conductivité thermique en saturé est tout à fait attendue. En effet, la conductivité thermique du liquide modèle est très fortement thermo-dépendante, comme nous l’avons souligné dans le paragraphe II.2.1.b.

Chaufferette instrumentée

Pour cette estimation, on se limite aux premiers instants (les 40 premières secondes de l’expérience) afin d’éviter de fortes élévations de température, et donc la variation de la conductivité thermique. Les transferts de chaleur étant 1D dans cette configuration, l’estimation est réalisée (Tableau 7) en considérant la température du thermocouple TC8, placé au centre de la chaufferette. Par ailleurs, nous avons vérifié que les autres thermocouples de la chaufferette donnaient la même évolution que celui-ci.

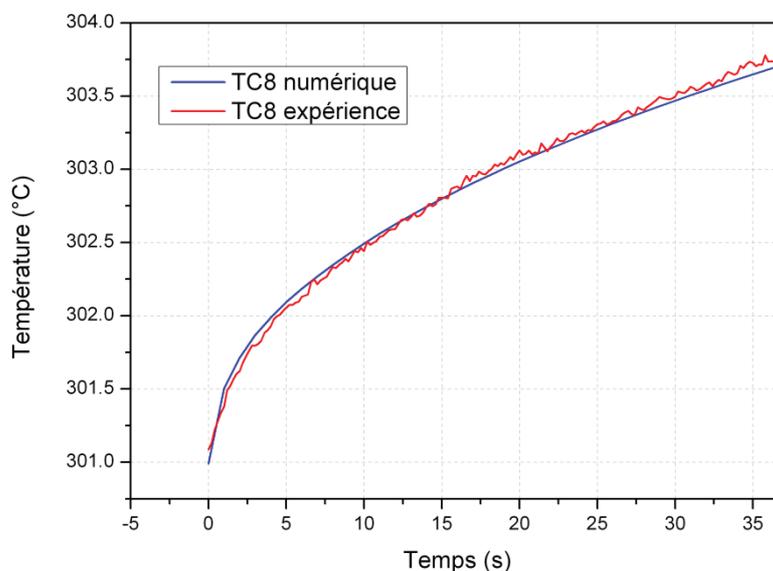


Figure III- 34 : Comparaison expérimental/numérique pour le TC8 situé au centre de la chaufferette en composite saturé.

	λ_z (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	Cp (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)
Valeurs estimées	0,56	1452

Tableau 7 : Valeurs de λ et Cp estimées pour le composite saturé à 25°C

II.2.4 Synthèse et comparaison avec les modèles usuels

L'ensemble des résultats obtenus (Tableau 8) est comparé avec le modèle parallèle dans le sens longitudinal (sens des fibres), et le modèle de Maxwell-Eucken dans le sens transverse. Les écarts relatifs sont satisfaisants puisqu'ils sont généralement inférieurs à 5%.

Seul le cas de la préforme sèche fait apparaître des écarts importants, qui avoisinent les 30%. Comme nous l'avons vu précédemment, cet écart est très probablement dû au modèle de Maxwell, qui ne prend pas en compte les contacts entre les fibres, et sous-estime donc la conductivité du renfort sec. En effet, la conduction dans les contacts entre mèches est prédominante dans ce cas. Dans notre cas, on observe une évolution linéaire de la conductivité en fonction du nombre de points de contact, donc du taux de fibres. Le bon accord des valeurs obtenues en plaque chaude gardée et en Hot Disk confirme l'hypothèse selon laquelle c'est bien le modèle qui n'est pas adapté, et non pas les mesures qui sont imprécises.

		Plaque chaude gardée	Chaufferette instrumentée	Hot Disk	Copernic	C-Therm
Liquide seul						
λ	Exp.					0,346
	Modèle					0,336
	Ecart (%)					3,0%
S=0						
λ_x	Exp.				0,51	
	Modèle				0,503	
	Ecart (%)				1,4%	
λ_z	Exp.	0,104		0,099		
	Modèle	0,07		0,07		
	Ecart (%)	32,6%		29,3%		
S=1						
λ_x	Exp.		0,68		0,62	
	Modèle		0,66		0,66	
	Ecart (%)		3,0%		6,4%	
λ_z	Exp.		0,56	0,594		
	Modèle		0,579	0,579		
	Ecart (%)		3,4%	2,6%		

Tableau 8 : Synthèse des résultats expérimentaux et comparaison avec les modèles usuels.

III Modélisation de la conductivité thermique du composite insaturé

Nous avons décrit dans la partie précédente les propriétés thermiques du matériau modèle dans deux cas limites :

- lorsque la saturation est nulle, c'est-à-dire quand le matériau se présente sous la forme d'une préforme sèche.
- lorsque la saturation est maximale et égale à 1, c'est-à-dire lorsque cette même préforme a été parfaitement imprégnée par un fluide, sans création de vides.

Cependant, comme nous l'avons déjà évoqué, il n'est pas possible de fabriquer des échantillons dont le taux de vides et sa distribution macro/micro soient contrôlés. Par conséquent, une modélisation est proposée afin de rendre compte de l'évolution de la conductivité thermique en fonction du taux de vides, et surtout du type de vides. Cette approche a été développée par une méthode d'homogénéisation périodique, dont les principes sont rappelés au début de cette partie. Dans la seconde partie, nous définirons la micro- et la macro-saturation, ainsi que les résultats de cette modélisation.

III.1 Procédures d'homogénéisation

III.1.1 Principe général

La description des transferts de chaleur dans les milieux poreux requiert l'établissement de modèles mathématiques s'inspirant généralement des méthodes utilisées en mécanique des milieux continus pour rechercher les expressions locales des lois de conservation. L'espace poral étant particulièrement complexe, il est toutefois nécessaire de passer par un changement d'échelle qui permet d'établir une équivalence entre le milieu réel dispersé et un milieu continu fictif. Concrètement, le milieu hétérogène Ω est transformé en un milieu homogène thermiquement équivalent Ω^* (Figure III- 35).

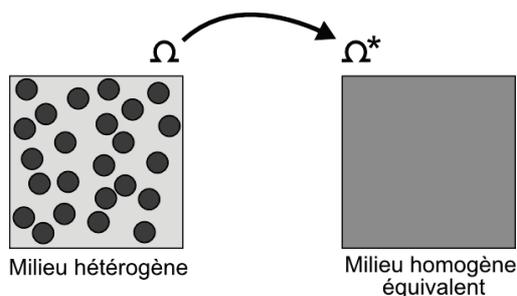


Figure III- 35 : Principe de l'homogénéisation

Le tenseur de conductivité thermique effective dépend bien sûr de la conductivité de chacune des phases solide et liquide, des fractions volumiques de ces phases, mais aussi de la structure géométrique du réseau solide.

L'établissement des équations macroscopiques est obtenu à partir des équations microscopiques de la thermodynamique des milieux continus, auxquelles sont appliquées des procédures de changement d'échelle. Les deux procédures les plus couramment utilisées sont :

- La technique de prise moyenne volumique, abondamment étudiée par [58–61]
- L’homogénéisation par développements asymptotiques, qu’on retrouve dans [31], [62–64]

Ces deux techniques font l’objet d’une description précise dans la suite.

III.1.2 Choix du VER

Un concept commun à toutes les théories d’homogénéisation est celui de volume élémentaire représentatif (VER), largement décrit dans la littérature [65–67]. En effet, une des étapes préliminaires aux procédures d’homogénéisation consiste à déterminer ce volume, qui, en règle générale, est le volume minimum à prendre en considération pour que, une fois appliquée la théorie d’homogénéisation, les résultats obtenus soient représentatifs du comportement macroscopique du milieu hétérogène.

D’une part, ce volume doit être assez grand pour englober toutes les phases présentes, mais d’autre part assez petit pour que les variations spatiales des propriétés à grande échelle n’impactent pas les moyennes calculées. Notons également que le choix d’un VER est dépendant de la propriété à déterminer. Le VER destiné à déterminer une porosité par exemple, n’est pas nécessairement le même que celui destiné à l’estimation d’une conductivité thermique. En cela, la définition du volume élémentaire représentatif peut dans certains cas ne pas être simple et faire l’objet d’une discussion. A titre d’exemple, la figure suivante représente l’évolution de la porosité d’un milieu poreux granulaire en fonction du volume élémentaire représentatif choisi [68].

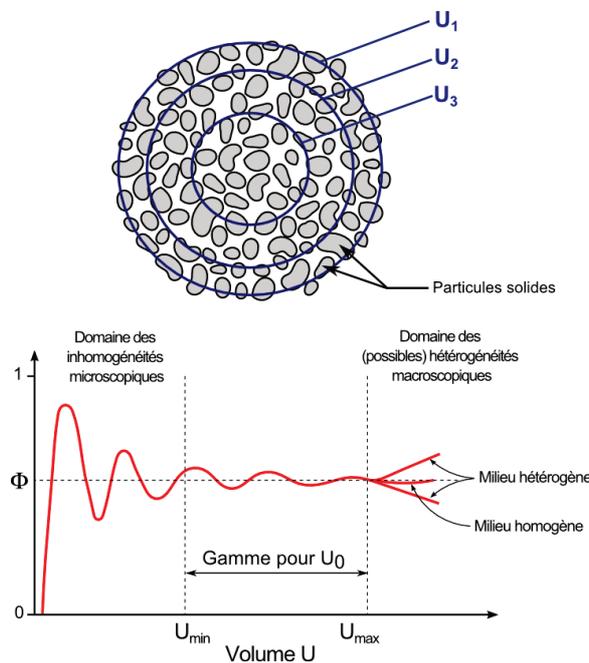


Figure III- 36 : Choix d’un VER pour la propriété de porosité d’un milieu poreux d’après [68].

Si le VER est trop petit ($U < U_{\min}$), nous sommes dans le domaine des micro-hétérogénéités, ce qui signifie que la taille des particules est trop grande par rapport à la taille du VER. Au contraire, si la taille du VER dépasse une certaine limite ($U > U_{\max}$), celui-ci masque les tendances globales et on peut voir apparaître des macro-hétérogénéités. Une taille optimale du VER est atteinte lorsque la valeur moyenne calculée au sein de ce VER est peu dépendante de la position.

III.1.3 Homogénéisation par méthode des moyennes volumiques

III.1.3.a Principe et hypothèses

Comme le souligne Tucker [69], l'approche par moyenne volumique comporte 4 étapes principales qui permettent d'obtenir un système d'équations moyennées décrivant le milieu macroscopique. La Figure III- 37 schématise ces étapes.

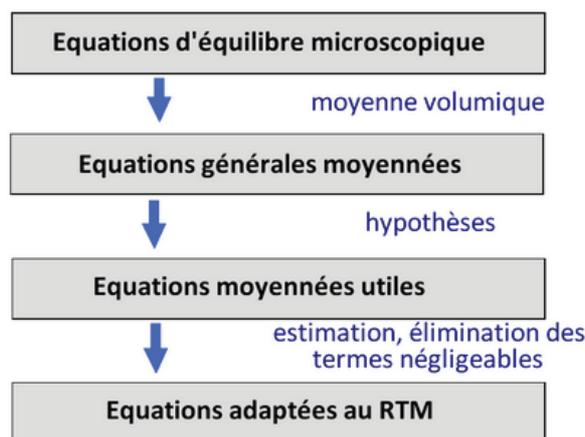


Figure III- 37 : Etapes principales d'une procédure d'homogénéisation par la méthode des moyennes volumiques.

- On commence par écrire les équations d'équilibre à l'échelle microscopique sous forme différentielle, pour chaque phase présente dans le milieu. Il s'agit des équations classiques de la mécanique des fluides ou encore de l'énergie.
- La deuxième étape consiste à moyenner les équations de chaque phase sur le VER choisi, afin de les combiner *in fine* et d'obtenir une équation globale moyennée. Ce procédé fait appel à des théorèmes de moyenne, et est rigoureux du point de vue mathématique.
- L'étape précédente a fait apparaître des termes parasites qui ne sont pas des variables moyennées. On définit donc des lois de comportement qui remplacent ces termes par des fonctions des variables moyennées, au moyen de nombreuses hypothèses. Ces lois de comportement sont substituées dans les équations générales moyennées, aboutissant à des équations moyennées utilisables.
- Enfin, la dernière étape éventuelle consiste à estimer les ordres de grandeur de chaque terme dans les équations moyennées, afin d'éliminer ceux qui sont négligeables pour une application RTM.

Hypothèses

Dans la suite, on nommera les deux phases « fluide » et « solide », dont les variables seront indicées respectivement f et s. La procédure d'homogénéisation de la conductivité thermique implique un certain nombre d'hypothèses :

- La phase solide est stationnaire et de porosité constante
- La densité, la chaleur spécifique et la conductivité thermique sont indépendantes de la température
- On suppose un équilibre thermique local, ce qui signifie que la température du fluide et du solide ont des moyennes intrinsèques de phase égales.
- Le fluide est newtonien

III.1.3.b Développement des équations

Remarque : La démarche mathématique d'homogénéisation par prise de moyennes volumiques est décrite précisément dans l'Annexe A. Seules les étapes principales de la méthode sont mentionnées dans cette partie. Le lecteur est donc invité à se référer à l'Annexe A pour plus d'explications.

Le développement des équations est basé sur la définition de la moyenne locale. Il existe en réalité trois manières de définir la grandeur moyennée d'une grandeur, qui sont toutes utilisées dans les équations que nous verrons dans la suite. Soit Ψ une grandeur définie en tout point d'un VER de volume V . La moyenne spatiale est simplement définie comme la valeur moyenne à l'intérieur du volume V . Elle est notée

$$\langle \Psi \rangle = \frac{1}{V} \int_V \Psi \, dV \quad \text{Eq. (3.58)}$$

Après cette définition de base, moyennons maintenant les équations dans les deux phases. On commence par écrire les équations sous forme différentielle dans chaque phase, une équation de conduction dans la phase solide Ω_s , et une équation de convection dans la phase fluide Ω_f . Dans la suite, solide et fluide seront respectivement indicés s et f. Le système local décrivant l'évolution de la température dans le milieu poreux est le suivant :

$$(\rho C_p)_s \frac{\partial T_s}{\partial t} = \nabla \cdot (\lambda_s \nabla T_s) \quad \text{dans } \Omega_s \quad \text{Eq. (3.59)}$$

$$(\rho C_p)_f \frac{\partial T_f}{\partial t} + (\rho C_p)_f \vec{v}_f \cdot \nabla T_f = \nabla \cdot (\lambda_f \nabla T_f) \quad \text{dans } \Omega_f \quad \text{Eq. (3.60)}$$

$$T_f = T_s \quad \text{sur } A_{fs} \quad \text{Eq. (3.61)}$$

$$\overline{n_{fs}} \cdot \lambda_f \nabla T_f = \overline{n_{fs}} \cdot \lambda_s \nabla T_s \text{ sur } A_{fs} \quad \text{Eq. (3.62)}$$

où A_{fs} est l'aire de l'interface entre le solide et le fluide.

Après le développement mathématique, on regroupe les termes homogènes à une conductivité, et on obtient finalement :

$$(\rho_f C_{p_f} \varepsilon_f + \rho_s C_{p_s} \varepsilon_s) \frac{\partial \langle T \rangle}{\partial t} + (\rho C_p)_f \langle v_f \rangle \cdot \nabla \langle T \rangle = \nabla \cdot [(\lambda_e + \lambda_D) \nabla \langle T \rangle] \quad \text{Eq. (3.63)}$$

$$\lambda_e = (\varepsilon_f \lambda_f + \varepsilon_s \lambda_s) + \frac{\lambda_f - \lambda_s}{V} \int_{A_{fs}} \overline{n_{fs}} \tilde{T}_f dA \quad \text{Eq. (3.64)}$$

$$\lambda_D = -\varepsilon_f \rho_f C_{p_f} \langle \tilde{v}_f b \rangle^f \text{ avec } \tilde{T}_f = b \cdot \nabla \langle T \rangle \quad \text{Eq. (3.65)}$$

où ε_f et ε_s sont les fractions volumiques de fluide et de solide.

On retrouve une équation de l'énergie modifiée, dans laquelle le terme capacitif est remplacé par une loi des mélanges entre la capacité du solide et celle du fluide. En ce qui concerne la conductivité, la conductivité effective apparaît comme la somme de deux tenseurs :

- Le tenseur de conductivité effectif statique λ_e
- Le tenseur de dispersion thermique λ_D

La signification physique de ces termes est expliquée en détail dans la partie suivante.

III.1.4 Homogénéisation périodique

Pour appliquer cette autre méthode, on suppose que le milieu poreux est spatialement périodique, c'est-à-dire que le volume total peut être généré par translation dans les 3 directions d'une cellule élémentaire. L'hypothèse fondamentale de l'homogénéisation est la condition de séparation des échelles, traduite par l'équation suivante :

$$\epsilon = \frac{l}{L} \ll 1 \quad \text{Eq. (3.66)}$$

l est la dimension caractéristique à l'échelle locale et L celle à l'échelle macroscopique.

Cette condition permet de définir deux systèmes de coordonnées indépendants, x pour l'échelle macroscopique et y pour l'échelle microscopique. Les grandeurs étoilées x^* et y^* sont adimensionnées telles que $x^* = x/L$ et $y^* = y/l$.

Les principales étapes de la procédure d'homogénéisation sont les suivantes :

- Comme pour la méthode des moyennes volumiques, on suppose que l'on connaît les équations aux dérivées partielles à l'échelle locale, et on cherche leur expression à l'échelle globale.
- On adimensionne la description locale. On adopte un point de vue macroscopique où la variable y^* intervient. Par exemple le gradient adimensionnel s'écrit

$$\text{Eq. (3.67)}$$

$$\nabla^* = l\nabla = l(\nabla_x + \nabla_y) = l\left(\frac{1}{L}\nabla_x^* + \frac{1}{l}\nabla_y^*\right) = \epsilon\nabla_x^* + \nabla_y^*$$

- Chaque nombre adimensionnel est évalué en fonction des puissances de ϵ . Une quantité adimensionnelle R est dite $O(\epsilon^p)$ si

$$\epsilon^{p+1/2} \leq |R| \leq \epsilon^{p-1/2} \quad \text{Eq. (3.68)}$$

- On revient ensuite à des équations dimensionnées en gardant l'ordre de grandeur entre les termes.
- Chaque grandeur inconnue Ψ est recherchée sous la forme de développements asymptotiques à échelles multiples en fonction de ϵ .

$$\Psi(x, y) = \Psi^0(x, y) + \epsilon\Psi^1(x, y) + \epsilon^2\Psi^2(x, y) + \dots \quad \text{Eq. (3.69)}$$

où les fonctions Ψ^i sont périodiques sur le domaine.

Ces développements asymptotiques sont injectés dans les équations normalisées. On identifie ensuite les termes de même puissance de ϵ , ce qui implique la résolution de problèmes successifs sur la cellule élémentaire.

Lorsque le système est résolu à l'ordre 0, les solutions sur les températures T_f^0 et T_s^0 satisfont :

$$T_f^0(x, y, t_c, t_d) = T_s^0(x, y, t_c, t_d) = T^0(x, t_c, t_d) \quad \text{Eq. (3.70)}$$

Où t_c et t_d sont deux échelles de temps indépendantes caractéristiques de la convection et de la diffusion. Cette équation à l'ordre 0 signifie qu'un équilibre local relatif est supposé en première approximation.

Ensuite, la résolution à l'ordre supérieur (ordre ϵ^1) amène :

$$\langle \rho C p \rangle \frac{\partial T^0}{\partial t_c} + \epsilon_f \langle \rho C p \rangle_f \langle \vec{v}_f \rangle^f \cdot \nabla_x T^0 = 0 \quad \text{Eq. (3.71)}$$

Où $\langle \rho C p \rangle = \epsilon_f \langle \rho C p \rangle_f + \epsilon_s \langle \rho C p \rangle_s$ est la capacité thermique moyenne par unité de volume du milieu poreux.

Ce résultat nous indique que les transferts de chaleur au premier ordre à l'échelle macroscopique sont seulement convectifs.

Lorsqu'on s'intéresse à l'équation regroupant les termes en ϵ^2 , l'évolution de la température moyenne est finalement donnée par :

$$\rho C_p \frac{\partial \langle T \rangle}{\partial t} + \varepsilon_f (\rho C_p)_f \langle v_f \rangle^f \cdot \nabla \langle T \rangle = \nabla \cdot [\lambda_{eff} \nabla \langle T \rangle] + O(\varepsilon^3) \quad \text{Eq. (3.72)}$$

On remarque que les deux méthodes (méthode des moyennes volumiques ou homogénéisation par développements asymptotiques) conduisent à la même équation macroscopique moyennée. On retrouve exactement la même expression que celle obtenue par la méthode des moyennes volumiques (voir Annexe A). λ_{eff} est ainsi le tenseur de conductivité effectif, qui est la somme de trois contributions :

Tenseur de conductivité thermique effective

↓

$$\lambda_{eff} = (\lambda_s \varepsilon_s + \lambda_f \varepsilon_f) \mathbf{I} + [\lambda_f \varepsilon_f \langle \nabla_y \vec{f} \rangle^f + \lambda_s \varepsilon_s \langle \nabla_y \vec{g} \rangle^s] - \varepsilon_f (\rho C_p)_f \langle \vec{f} \vec{v}_f \rangle^f$$

Eq. (3.73)

Modèle parallèle

λ_m

Tenseur de tortuosité

λ_t

Tenseur de dispersion thermique

λ_d

- λ_m , qui est une combinaison linéaire des conductivités des deux phases pondérées par leurs fractions volumiques respectives. Notons au passage qu'on retrouve donc par le calcul la très classique loi des mélanges, aussi appelé modèle parallèle.
- λ_t , le tenseur de tortuosité thermique. Il a été nommé ainsi en raison de l'analogie avec la tortuosité hydrodynamique, qui est définie en mécanique des fluides comme le rapport de la longueur réelle parcourue par le fluide sur la distance la plus courte entre les deux points considérés (Figure III- 38).

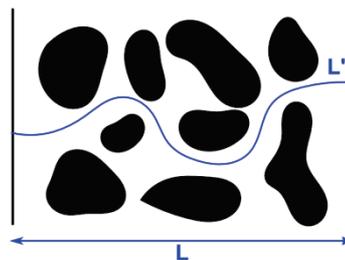


Figure III- 38 : Tortuosité au sens hydrodynamique : égale à L'/L

L'analogie avec la thermique est retrouvée en assimilant le flux de chaleur à l'écoulement. Cette appellation est toutefois un peu galvaudée car la conductivité thermique de la phase solide est non nulle, alors que le solide est imperméable à l'écoulement. La tortuosité au sens thermique représente la complexité de la trajectoire du flux de chaleur dans le milieu poreux.

- λ_d , le tenseur de dispersion thermique. Apparaissant lorsque les vitesses et les températures locales à l'échelle microscopique diffèrent de leurs valeurs moyennes, il est nul lorsque le liquide est statique. Concrètement, les phénomènes de convection locaux entre les mèches apportent une contribution complémentaire et améliorent la conductivité thermique effective.

L'homogénéisation des équations permet de tirer une conclusion essentielle : lorsque que le fluide est supposé statique, la contribution liée à la dispersion thermique disparaît. On remarque alors que le tenseur de conductivité thermique en statique n'est plus composé que de deux termes : un terme de loi des mélanges, et un terme de tortuosité lié à la géométrie. En somme, quelque soit le type de matériau, d'architecture du renfort et quelque soit la direction considérée, on s'aperçoit que le modèle parallèle apparaît comme une loi universelle valable dans toutes les situations, qui doit simplement être corrigée par un terme de tortuosité. Pour preuve, on a calculé la tortuosité dans le cas d'un UD idéal dans le sens des fibres, qui est bien nulle. Pour ce cas particulier, le modèle parallèle est donc exact. Pour tous les autres cas, il suffit de retrancher (λ_t étant négatif) à cette loi la valeur de la tortuosité adaptée au milieu.

Pour la résolution du problème qu'on appelle « fermeture », on fait intervenir deux vecteurs f et g qui sont les inconnues du système suivant :

$$(\rho C_p)_f \nabla f \vec{v}_f = \nabla \cdot (\lambda_f \nabla f) - (\rho C_p)_f \left[\vec{v}_f - \frac{\varepsilon_f (\rho C_p)_f}{\langle \rho C_p \rangle} \langle \vec{v}_f \rangle^f \right] \quad \text{dans } \Omega_f \quad \text{Eq. (3.74)}$$

$$0 = \nabla \cdot (\lambda_s \nabla g) + (\rho C_p)_s \left[\frac{\varepsilon_f (\rho C_p)_f}{\langle \rho C_p \rangle} \langle \vec{v}_f \rangle^f \right] \quad \text{dans } \Omega_s \quad \text{Eq. (3.75)}$$

$$\vec{f} = \vec{g} \quad \text{sur } \Gamma \quad \text{Eq. (3.76)}$$

$$(\lambda_f \nabla f) \vec{n}_{fs} = (\lambda_s \nabla g) \vec{n}_{fs} + (\lambda_s - \lambda_f) \vec{n}_{fs} \quad \text{sur } \Gamma \quad \text{Eq. (3.77)}$$

Ω_f représente la phase fluide, Ω_s la phase solide et Γ l'interface solide/fluide.

La résolution de ce système est opérée à l'aide de Comsol Multiphysics, dans lequel on implémente deux modules d'équations aux dérivées partielles. Les conductivités effectives du milieu poreux sont des fonctions de ces deux vecteurs f et g , suivant la direction considérée. D'autre part, les géométries utilisées sont représentatives de celles que l'on retrouve aux deux échelles du matériau composite, comme nous allons le voir dans la partie suivante.

III.2 Définition de la Micro- et de la Macro-saturation

Les vides créés en LCM sont de natures différentes selon qu'ils se trouvent dans les mèches ou entre celles-ci. Afin de tenir compte de la répartition des vides et de leurs tailles dans le composite, nous décomposons le scalaire de saturation en deux nouvelles grandeurs que nous allons définir dans la suite: la micro-saturation et la macro-saturation.

III.2.1 Définition des grandeurs géométriques

Dans un premier temps, définissons avec soin les paramètres géométriques aux deux échelles du renfort. Le taux de fibres volumique dans le composite (au sens usuel du terme), est noté Φ_f^c . En partant de la définition de ce paramètre, on décompose les taux de fibres en deux échelles :

- Le taux de fibres dans une mèche (échelle micro), noté Φ_f^m
- Le taux de mèches dans le composite (échelle macro), noté Φ_m^c

Le lien entre ces trois taux est directement obtenu par le produit :

$$\Phi_f^c = \Phi_f^m \cdot \Phi_m^c \quad \text{Eq. (3.78)}$$

III.2.2 Micro-saturation

On définit tout d'abord la micro-saturation notée S_μ au sein-même d'une mèche. La mèche est caractérisée par la présence de micro-vides, dont la forme est généralement celle de cylindres très allongés dans le sens de la mèche. En coupe transverse, on peut donc modéliser ces vides par des disques remplis d'air, répartis de façon régulière sur la cellule élémentaire, comme on peut le voir sur la figure suivante.

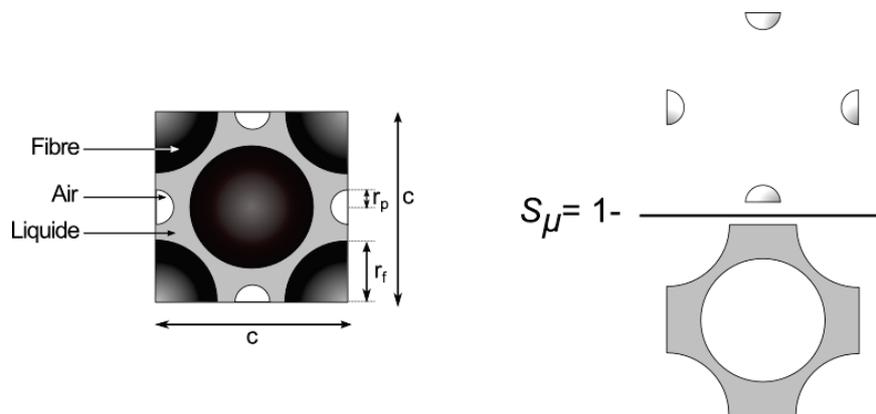


Figure III- 39 : Définition de la micro-saturation

La micro-saturation est définie comme le complémentaire du taux de vides microscopique. Ce dernier est défini comme le rapport du volume total de vides sur le volume total que ceux-ci pourraient occuper au maximum, en l'occurrence le volume inter-fibres.

$$S_\mu = 1 - \text{taux de vides micro} = 1 - \frac{V_p}{V_{mèches}(1 - \Phi_f^m)} \quad \text{Eq. (3.79)}$$

où V_p représente le volume total des micro-vides. Dans la cellule périodique, le rayon des bulles d'air est relié à la micro-saturation par la relation suivante :

$$r_p = \sqrt{\frac{(1 - S_\mu)(c^2 - 2\pi r_f^2)}{2\pi}} \quad \text{Eq. (3.80)}$$

où c est le côté du VER à l'échelle microscopique et r_f le rayon des fibres.

III.2.3 Macro-saturation

De la même manière, la macro-saturation notée S_M est définie à l'échelle macroscopique. La forme des macro-vides se rapproche généralement de celle d'un ellipsoïde, ils sont donc idéalisés et modélisés en coupe par une ellipse, dont le facteur de forme est égal à celui des mèches.

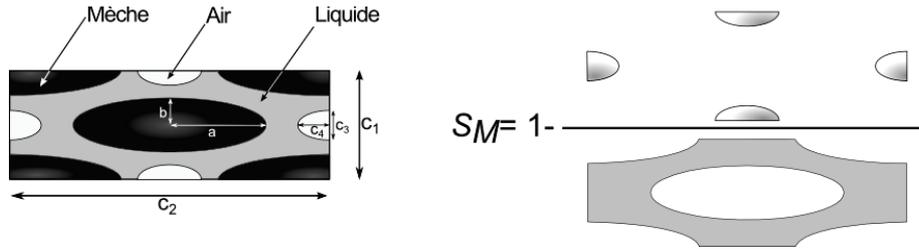


Figure III- 40 : Définition de la macro-saturation

La macro-saturation est définie comme le complémentaire du rapport du volume total de macro-vides sur le volume total qu'ils pourraient occuper au maximum, en l'occurrence l'espace inter-mèches.

$$S_M = 1 - \text{taux de vides macro} = 1 - \frac{V_P}{V_{comp}(1 - \Phi_m^c)} \quad \text{Eq. (3.81)}$$

où V_P représente le volume total des macro-vides. Dans la cellule périodique, le demi-grand axe des vides est relié à la macro-saturation par la relation suivante :

$$c_3 = \sqrt{\frac{(1 - S_M)(c_1 c_2 - 2\pi ab)}{0,4 \pi}} \quad \text{Eq. (3.82)}$$

où a et b sont respectivement le demi-petit-axe et le demi-grand axe des ellipses représentant les mèches, et c_1 et c_2 les dimensions de la cellule périodique à l'échelle macroscopique.

On exprime désormais la saturation globale du renfort comme une combinaison linéaire des micro- et macro-saturations, pondérée par des facteurs qui dépendent uniquement de la géométrie du renfort. Ceux-ci rendent compte des fractions de fluide présentes dans les mèches et entre les mèches. La saturation totale est obtenue par :

$$S_T = \left(\frac{\phi_m^c - \phi_f^c}{1 - \phi_f^c} \right) S_\mu + \left(\frac{1 - \phi_m^c}{1 - \phi_f^c} \right) S_M \quad \text{Eq. (3.83)}$$

Remarque : La démonstration de cette équation est présentée en détails dans l'Annexe C.

III.3 Faisceau de courbes de conductivité transverse

III.3.1 Protocole

Les paramètres géométriques du modèle (Tableau 10) tels que les dimensions d'une mèche ou encore le taux de fibres dans la mèche ont été obtenus par observation microscopique d'un renfort similaire à celui utilisé dans cette étude. Le taux de fibres est fixé à 49% en volume. Les conductivités thermiques des trois phases sont issues des expériences de caractérisation présentées au début de ce chapitre, et rassemblées dans le Tableau 9.

	λ (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)
Fibre de verre	1.00
Liquide modèle	0.346
Bulles d'air	0.026

Tableau 9 : Conductivités des trois phases utilisées dans la modélisation

Paramètre	ϕ_m^c	ϕ_f^m	ϕ_f^c	r_f	a	b
Valeur	0.70	0.70	0.49	3,9 μ m	0.975 mm	0.145 mm

Tableau 10 : Paramètres géométriques utilisés dans la modélisation

Les équations homogénéisées obtenues par la méthode des développements asymptotiques sont résolues à l'aide du logiciel d'éléments finis Comsol Multiphysics, dans le cas particulier où la vitesse d'écoulement est nulle. On se retrouve alors dans le cas classique de la conductivité effective en régime stationnaire donnée dans Sanchez & Palencia [62]. On impose des conditions de périodicité sur toutes les frontières des cellules élémentaires. La procédure d'homogénéisation est séquentielle et se décompose de la façon suivante :

- A l'échelle microscopique, la taille des inclusions gazeuses dans la cellule élémentaire est imposée, ce qui implique que S_μ est fixé. La résolution du problème numérique fournit une valeur de conductivité thermique effective de la mèche.
- La conductivité de la mèche obtenue est réinjectée à l'échelle supérieure comme paramètre d'entrée de la simulation sur la cellule macroscopique. Là encore, on impose la taille des bulles d'air se situant entre les mèches, ce qui implique une valeur de S_M fixée. La résolution du problème numérique à cette échelle nous procure une valeur de conductivité thermique effective du milieu poreux, valable pour un couple (S_μ, S_M) .

La figure suivante schématise ce protocole réalisé successivement sur les deux cellules élémentaires.

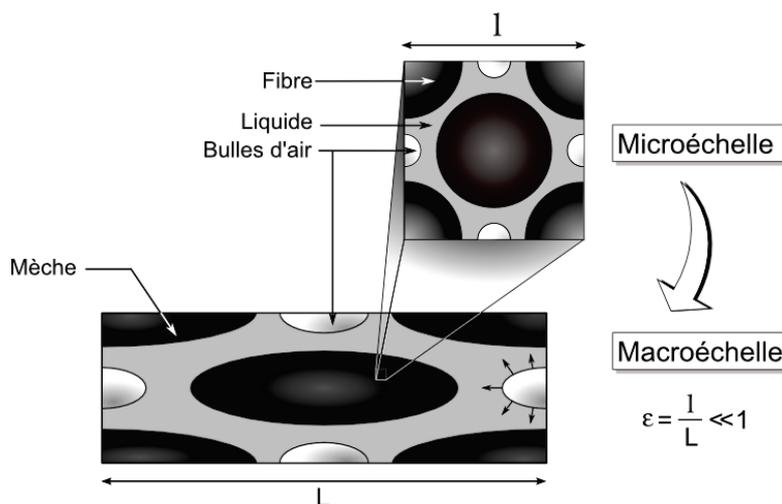


Figure III- 41 : Schéma du principe de l'homogénéisation à double échelle

Notons enfin que les contacts entre les fibres et entre les mèches ne sont pas pris en compte dans la simulation.

III.3.2 Résultats

La Figure III- 42 représente l'évolution de la conductivité du composite en fonction de la saturation globale. Cette courbe est obtenue pour un cas particulier où $S_M=0$, c'est-à-dire que l'espace inter-mèches est rempli de manière idéale, les bulles ne se trouvant qu'à l'intérieur des mèches. L'équation (3.83) nous renseigne sur le fait que l'espace inter-mèches représente 59% du volume que peut occuper le fluide car $\left(\frac{1-\phi_t^c}{1-\phi_f^c}\right)=0,59$. Par conséquent, si on impose une macro-saturation de 1 (comme c'est le cas sur la Figure III- 42), la saturation totale minimale est imposée à 0.59, ce que l'on retrouve sur le graphe. La saturation totale de 1 quant à elle, n'est obtenue que lorsque micro et macro saturations sont maximales et toutes deux égales à 1.

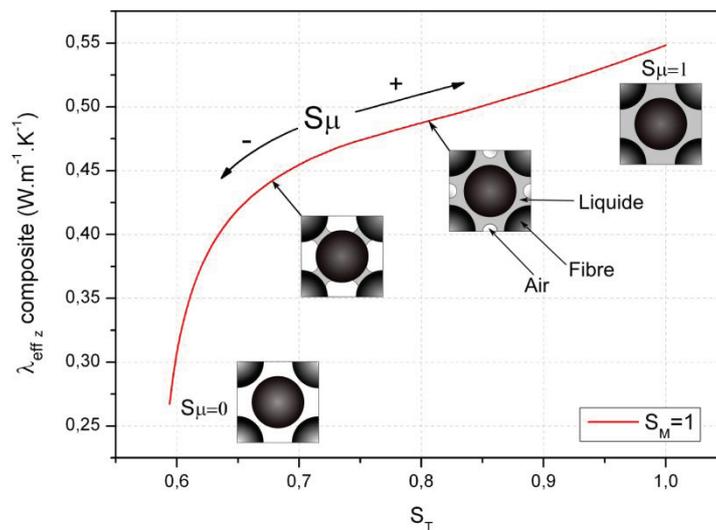


Figure III- 42 : Evolution de la conductivité thermique du composite en fonction de la micro-saturation. La macro-saturation est fixée à 1 dans ce cas.

Le calcul de la conductivité a ensuite été reproduit pour tous les couples S_μ - S_M possibles. Les courbes sont paramétrées en S_M , et pour chaque valeur de S_μ , la valeur de S_T est fixée grâce à l'équation (3.83). L'ensemble des courbes obtenues représente ce que l'on appellera dans la suite un faisceau de courbes de la conductivité thermique transverse. Celui-ci est représenté en Figure III- 43, et décrit donc la conductivité du composite en fonction du volume total vides présents, et surtout, en fonction de la répartition entre micro- et macro-vides.

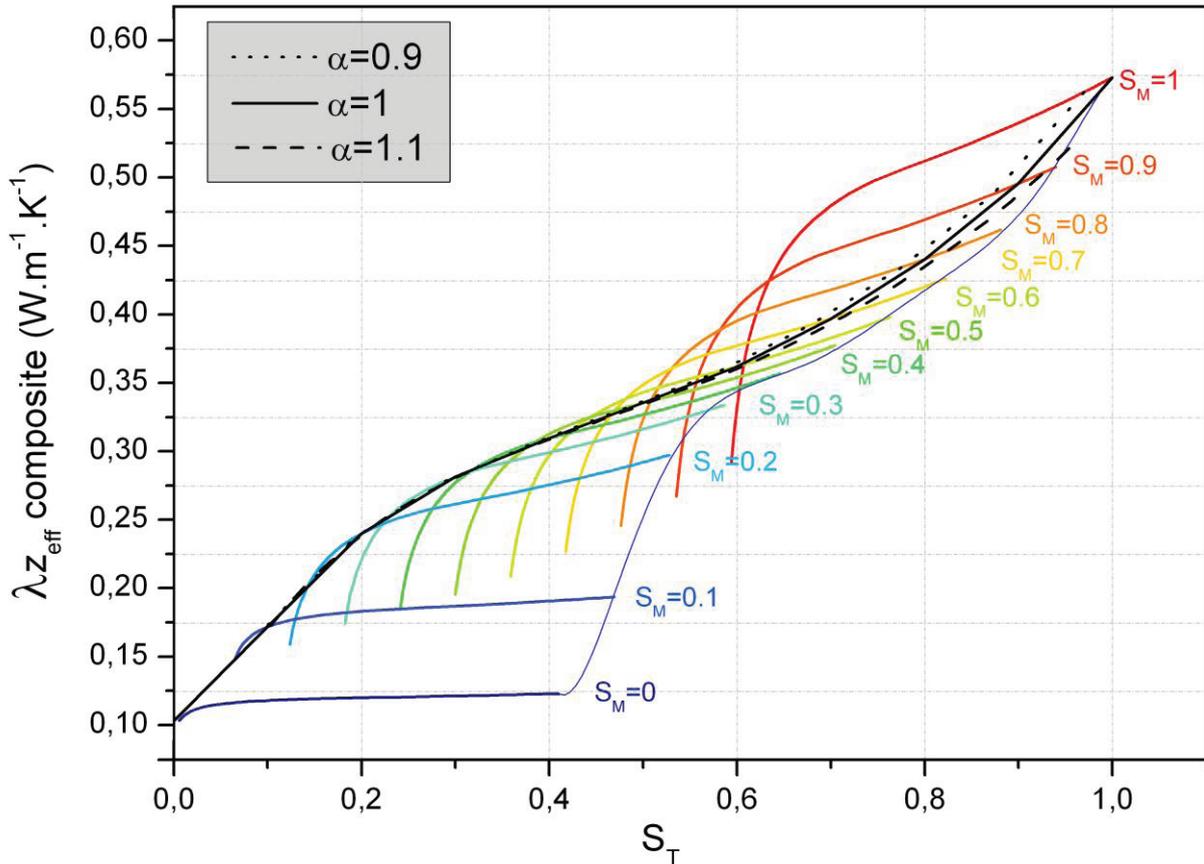


Figure III- 43 : Faisceau de courbes de la conductivité transverse en fonction de la saturation totale et de la répartition S_{μ}/S_M

L'allure de cette courbe permet de tirer plusieurs conclusions partielles :

- La valeur trouvée de la conductivité du renfort sec (à $S_T=0$) est très proche de celle donnée par le modèle de Maxwell, puisque l'homogénéisation ne prend pas en compte non plus les contacts entre mèches et entre fibres. En conséquence, cette valeur a été recalée sur la courbe avec les valeurs issues des campagnes de mesure de la conductivité transverse.
- En premier lieu, on constate que la largeur du faisceau de courbes indique que l'influence de la répartition micro/macro sur la valeur de la conductivité du milieu homogène est majeure. A titre d'exemple, si on considère un échantillon dont la saturation totale est égale à 0,7, la courbe maîtresse indique que la conductivité transverse de celui-ci est comprise dans un intervalle de largeur $[0,37 ; 0,48]$, dépendamment de la répartition des vides dans cet échantillon.
- A l'inverse, si on connaît *a priori* la conductivité thermique transverse d'un échantillon insaturé, il n'est pas possible de conclure sur son taux de saturation total. Prenons un exemple : si la conductivité est égale à $0,45 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, la saturation totale correspondante est comprise dans un intervalle $[0,65 ; 0,85]$.

Par conséquent, si l'on était capable d'identifier **à la fois** la saturation globale (par un capteur de conductimétrie par exemple), et la conductivité thermique transverse, nous serions capables de discriminer la proportion de macro-vides et de micro-vides dans le matériau.

Nous avons vu que le faisceau de courbes de conductivité considère l'intégralité des couples S_μ/S_M , quelque soient leurs valeurs. Cependant, on peut s'interroger sur la vraisemblance de certains de ces couples, en particulier ceux pour lesquels le déséquilibre entre S_μ et S_M est fort.

Le point pour lequel $S_\mu=0$ et $S_M=1$ signifie physiquement que les mèches sont imperméables et que le fluide n'investit que les espaces entre les mèches. De la même façon, le point pour lequel $S_\mu=1$ et $S_M=0$ correspondrait à un cas limite où seules les mèches seraient imprégnées, et où les espaces inter-mèches resteraient complètement vides.

En résumé, certains couples S_μ/S_M conduisent à des situations physiquement peu probables, ce qui nous pousse à considérer un nombre adimensionnel noté α et défini comme le rapport de la micro-saturation sur la macro-saturation :

$$\alpha = \frac{S_\mu}{S_M} \quad \text{Eq. (3.84)}$$

Lorsque $\alpha \ll 1$, S_M est prédominant, donc les défauts créés sont essentiellement des micro-vides dans les mèches. Lorsque $\alpha \gg 1$, c'est la micro-saturation qui est prépondérante, donc les vides sont créés entre les mèches. On remarque au passage une certaine analogie avec le nombre capillaire.

Ce paramètre α n'est pas connu, et il n'est pas exclu qu'il puisse varier avec le temps au cours d'une injection. Cependant, on remarque que lorsqu'on trace plusieurs courbes d'iso- α en faisant varier fortement α autour de 1, celles-ci se superposent bien dans la première partie de la courbe, c'est-à-dire pour les faibles saturations. On peut donc raisonnablement considérer que ces courbes décrivent bien la conductivité thermique pour les faibles saturations. En revanche, dépendamment de la valeur de α choisie, les courbes se séparent pour des taux de saturation supérieurs à 0,7.

On observe alors que plus la valeur de α est éloignée de 1, plus le taux de vides résiduel est important, ce dernier n'étant nul que quand α vaut 1. Sur la figure suivante, ce taux de vides résiduel a été tracé en fonction de la valeur de α , par lecture directe sur la courbe. On retrouve à nouveau une analogie avec le nombre capillaire avec une courbe en V caractéristique, dont le minimum est atteint quand $S_\mu=S_M$.

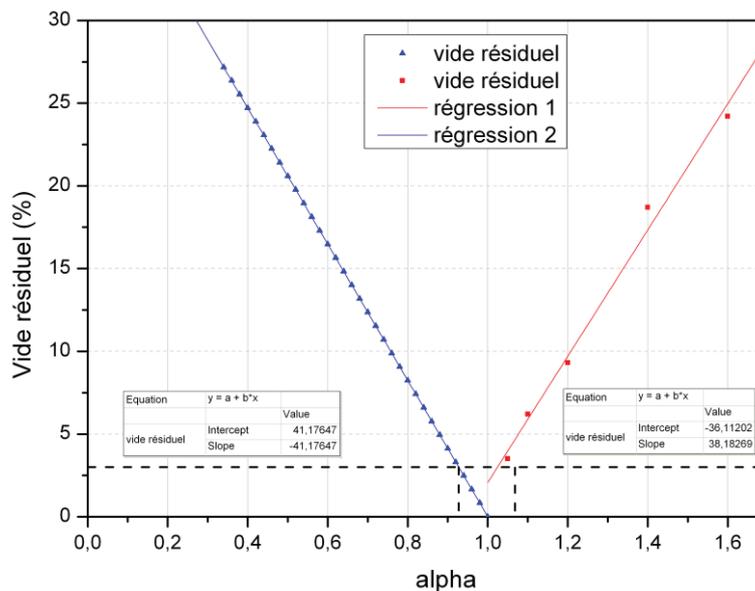


Figure III- 44 : Vide résiduel en fonction du paramètre alpha

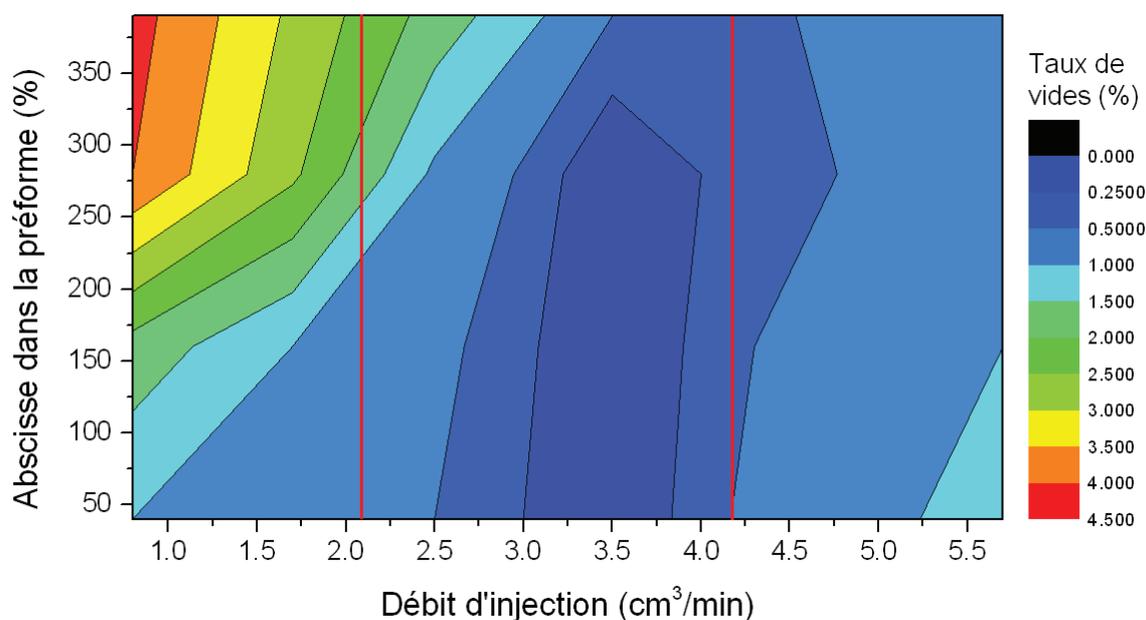


Figure III- 45 : Taux de vide en fonction du débit après saturation maximale (expérience menée à débit constant sur fluide eau-glycérol par Sébastien Guérout) [70]

Or, les travaux de thèse de Guérout [70] réalisés sur les mêmes matériaux ont permis de montrer que, pour le débit d'injection utilisés dans nos expériences (symbolisés par des traits rouges sur la Figure III- 45), le taux résiduel de vide maximal atteignait les 3%. En utilisant la courbe de la Figure III- 44, cette valeur nous fournit donc directement un encadrement de la valeur de α en fin d'injection, en l'occurrence :

$$\alpha \in [0.93 ; 1.07] \quad \text{Eq. (3.85)}$$

En conclusion, on fait donc l'hypothèse que la courbe réelle de conductivité est comprise quelque part entre les deux courbes obtenues pour $\alpha=0.93$ et $\alpha=1.07$. Ceci conduit donc à définir l'enveloppe de variation de la conductivité transverse (traits discontinus sur la Figure III- 43) qui correspond à une variation maximale de $\pm 5\%$ autour de la courbe correspondant à $\alpha=1$. Pour l'identification, la courbe $\alpha=1$ sera utilisée, et un calcul d'incertitude sera proposé pour évaluer l'erreur commise en faisant cette hypothèse.

IV Conclusion partielle

Dans ce chapitre, un panorama des méthodes de caractérisation thermique appliquées aux matériaux composites a tout d'abord été dressé. Nous avons vu qu'un nombre conséquent de dispositifs permettaient la mesure du tenseur de conductivité thermique soit sur la préforme sèche, soit sur le matériau réticulé, mais que très peu s'adaptait au cas des composites liquides anisotropes. Partant de ce constat, un dispositif a été conçu afin de rendre possible la mesure sur l'échantillon liquide, puis un autre modifié pour permettre la détermination de la conductivité dans les autres directions, toujours en saturé.

Par ailleurs, un certain nombre de méthodes a été employé pour caractériser les propriétés thermiques du matériau de l'étude lorsque $S=0$ et $S=1$. La conductivité étant une grandeur intensive, il a fallu recourir à une modélisation pour décrire la conductivité thermique transverse en fonction du taux de vide et du type de vides présents dans l'échantillon. Cette approche réalisée grâce à une homogénéisation par développements asymptotiques qui a montré une cohérence avec l'approche classique des moyennes volumiques, et a abouti à la création d'un abaque de conductivité décrivant l'ensemble des combinaisons possibles de S_μ et S_M . Enfin, une courbe de conductivité thermique transverse en fonction de la saturation totale a été sélectionnée moyennant quelques hypothèses.

L'ensemble des résultats obtenus dans ce chapitre va être utilisé dans le chapitre suivant, qui décrit le banc expérimental ainsi que la méthode d'identification de la saturation.

Références bibliographique du chapitre III

- [26] “Isolation thermique - détermination de la résistance thermique et des propriétés connexes en régime stationnaire - méthode de la plaque chaude gardée,” *ISO 8302:1991*.
- [27] A. Degiovanni, “Conductivité et diffusivité thermique des solides,” *Techniques de l’Ingénieur*, vol. R2850, pp. 1–15, 1994.
- [28] A. Degiovanni, J. C. Batsale, and D. Maillat, “Mesure de la diffusivité longitudinale de matériaux anisotropes.,” *Revue générale de Thermique*, vol. 35, pp. 141–147, 1996.
- [29] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, and G. L. Abbott, “Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity,” *Journal of Applied Physics*, vol. 32, no. 9, 1961.
- [30] A. B. Donaldson and R. E. Taylor, “Thermal diffusivity measurement by a radial heat flow method,” *Journal of Applied Physics*, vol. 46, no. 4584, 1975.
- [31] A. Matine, N. Boyard, P. Cartraud, G. Legrain, and Y. Jarny, “Modeling of thermophysical properties in heterogeneous periodic media according to a multi-scale approach: Effective conductivity tensor and edge effects,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 62, pp. 586–603, Jul. 2013.
- [32] Y. Jarny and P. Guillemet, “Estimation simultanée de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique de matériaux orthotropes,” in *Congrès SFT*, 2001, pp. 609–614.
- [33] A. J. Angström, “A new method of determining the thermal conductivity of bodies,” *Philosophical Magazine*, vol. 25, pp. 130–142, 1863.
- [34] W. Nunes dos Santos, J. Nicolau dos Santos, P. Mummery, and A. Wallwork, “Thermal diffusivity of polymers by modified angström method,” *Polymer Testing*, vol. 29, no. 1, pp. 107–112, Feb. 2010.
- [35] S. E. Gustafsson, “Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 62, no. 3, p. 797, 1990.
- [36] M. Gustavsson, E. Karawacki, and S. E. Gustafsson, “Thermal conductivity, thermal diffusivity and specific heat of thin samples from transient measurement with Hot Disk sensors,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 65, no. 12, p. 3856, 1994.
- [37] M. Thomas, N. Boyard, N. Lefevre, Y. Jarny, D. Delaunay, and N. Lefèvre, “An experimental device for the simultaneous estimation of the thermal conductivity 3-D tensor and the specific heat of orthotropic composite materials,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 53, no. 23–24, pp. 5487–5498, Nov. 2010.
- [38] J. D. Menczel and R. B. Prime, *Thermal analysis of polymers: Fundamentals and Applications*. 2009.
- [39] J. C. Maxwell, “A Treatise on Electricity and Magnetism,” in *3rd edition*, New York:D., .

- [40] Tavman I.H., “Effective thermal conductivity of isotropic polymer composites,” *Science*, vol. 25, no. 5, pp. 723–732, 1998.
- [41] R. Rolfes and U. Hammerschmidt, “Transverse thermal conductivity of CFRP laminates: A numerical and experimental validation of approximation formulae,” *Composites Science and Technology*, vol. 54, no. 1, pp. 45–54, 1995.
- [42] D. P. H. Hasselman, K. Y. Donaldson, and J. R. Thomas, “Effective thermal conductivity of uniaxial composite with cylindrically orthotropic carbon fibers and interfacial barrier,” vol. 27, no. 6, pp. 637–644, 1993.
- [43] M. R. Kulkarni and R. P. Brady, “A model of global thermal conductivity in laminated carbon/carbon composites,” vol. 57, pp. 277–285, 1997.
- [44] D. Lecoite, “Caractérisation et simulation des processus de transferts lors d’injection de résine pour le procédé RTM,” Nantes University, 1999.
- [45] M. Villière, D. Lecoite, V. Sobotka, N. Boyard, and D. Delaunay, “Experimental determination and modeling of thermal conductivity tensor of carbon/epoxy composite,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 46, pp. 60–68, Nov. 2012.
- [46] K. K. Chawla, *Composite materials: science and engineering*. 1998.
- [47] Rayleigh, “On the influence of obstacles arranged in rectangular order upon the properties of a medium,” *Philosophical Magazine*, vol. 34, p. 481, 1882.
- [48] S. W. Tsai and J. C. Halpin, “Environmental factors in composite materials design,” *Air force materials laboratory*, 1967.
- [49] G. S. Springer, A. Arbor, and S. W. Tsai, “Unidirectional Materials,” vol. 1, pp. 166–173, 1967.
- [50] R. C. Progelhof, J. L. Throne, and R. R. Ruetsch, “Methods for predicting the Thermal Conductivity of Composite Systems: A Review,” *Polymer engineering and science*, vol. 16, 1976.
- [51] L. E. Nielsen, “Thermal conductivity of particulate-filled polymers,” *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 17, no. 12, pp. 3819–3820, 1973.
- [52] R. Pal, “On the Lewis–Nielsen model for thermal/electrical conductivity of composites,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 39, no. 5, pp. 718–726, May 2008.
- [53] Société Française de Thermique, “Sft-Airbus France seminar: Thermal characterization of monolithic composite materials, modeling- characterization-round robin test,” 2005.
- [54] M. Thomas, “Propriétés thermiques de matériaux composites: caractérisation expérimentale et approche microstructurale,” Université de Nantes, 2008.
- [55] J. Y. Rolland, “Etude de faisabilité d’un changement de configuration expérimental,” Nantes, 2011.
- [56] L. Rolla and G. Piccardi, “International Critical Tables of Numerical Data, Physics, Chemistry and Technology,” vol. 196, p. 116.

- [57] W. Dimoplon, “Estimating specific-heat of liquid mixtures,” *Chemical Engineering Journal*, vol. 79, pp. 64–66, 1972.
- [58] M. Quintard and S. Whitaker, “Transport in ordered and disordered porous media: volume averaged equations, closure problems and comparisons with experiments,” *Chemical Engineering Science*, vol. 48, pp. 2537–2564, 1993.
- [59] M. Quintard and S. Whitaker, “Two-medium treatment of heat transfer in porous media: numerical results for effective properties,” *Science*, vol. 20, 1997.
- [60] G. H. Crapiste, E. Rotstein, and S. Whitaker, “A general closure scheme for the method of volume averaging,” *Chemical Engineering Science*, vol. 41, no. 2, pp. 227–235, 1986.
- [61] M. Kaviany, *Principles of Heat Transfer in Porous Media*, Mechanical. 1995.
- [62] E. Sanchez-Palencia, *Non-homogeneous media and vibration theory*. 1980.
- [63] C. Moyne, “Thermal dispersion in porous media: one-equation model,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 43, no. 20, pp. 3853–3867, Oct. 2000.
- [64] F. Dubot and N. Boyard, “Application de la théorie de l’homogénéisation pour le calcul de la dispersion thermique lors de l’écoulement d’un fluide dans un milieu poreux périodique,” 2011.
- [65] C. Kanit, S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury, and D. Jeulin, “Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach,” *International Journal of Solids and Structures*, vol. 40, pp. 3647–3679, 2003.
- [66] C. Grufman and F. Ellyin, “Determining a representative volume element capturing the morphology of fibre reinforced polymer composites,” *Composites Science and Technology*, vol. 67, pp. 766–775, 2007.
- [67] D. Trias, J. Costa, B. Fiedler, T. Hobbiebrunken, and J. E. Hurtado, “A two-scale method for matrix cracking probability in fibre-reinforced composites based on a statistical representative volume element,” *Composites Science and Technology*, vol. 66, no. 11–12, pp. 1766–1777, 2006.
- [68] Y. Bachmat and J. Bear, “Macroscopic modelling of transport phenomena in porous media. Part 1: the continuum approach,” *Transport in Porous Media*, vol. 1, pp. 213–240, 1986.
- [69] C. L. Tucker and R. B. Dessenberger, “Governing equations for flow and heat transfer in stationary fiber beds,” *Flow and Rheology in Polymer Composites Manufacturing*, 1992.
- [70] S. Guérout, “Analyse expérimentale de la saturation des milieux fibreux à double échelle de pores: application à la mise en œuvre des matériaux composites par procédé RTM,” Le Havre University, France, 2012.

CHAPITRE IV

Identification de la saturation par analyse thermique

I	ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE	93
I.1	CONTEXTE GENERAL.....	93
I.1.1	<i>Lien entre propriétés mécaniques et taux de vide résiduel.....</i>	93
I.1.2	<i>Les vides et leurs mécanismes de formation.....</i>	94
I.1.2.a	Les zones sèches.....	94
I.1.2.b	Micro- et macro-vides	95
I.1.2.c	Nombre capillaire optimal	96
I.1.3	<i>Devenir des vides créés</i>	98
I.1.4	<i>Solutions employées pour réduire le taux de vide</i>	99
I.1.5	<i>Mesure de la saturation.....</i>	100
I.1.5.a	Emission d'ondes ultrasonores	100
I.1.5.b	Observations optiques	100
I.1.5.c	Utilisation de capteurs conductimétriques.....	102
I.1.5.d	Utilisation de capteurs diélectriques.....	103
I.1.6	<i>Modélisation de la saturation.....</i>	104
I.1.6.a	Modélisation par des perméabilités relatives.....	105
I.1.6.b	Modélisation par loi de Darcy avec source.....	106
II	DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....	107
II.1	PRESENTATION GENERALE	107
II.2	INSTRUMENTATION	109
II.2.1	<i>Instrumentation thermique</i>	109
II.2.2	<i>Instrumentation conductimétrique</i>	110
II.2.3	<i>Capteurs de pression.....</i>	112
II.3	SYSTEME D'ACQUISITION	112
II.4	RENFORT ET FLUIDE MODELE UTILISES.....	112
II.4.1	<i>Fluide modèle.....</i>	112
II.4.2	<i>Renfort fibreux</i>	113
II.5	PROCEDURES D'ETALONNAGE DES CAPTEURS	113
II.5.1	<i>Etalonnage des fluxmètres thermiques.....</i>	114
II.5.1.a	Conception d'un banc de caractérisation des fluxmètres	114
II.5.1.b	Procédure d'étalonnage des fluxmètres	118
II.5.2	<i>Etalonnage du capteur de conductimétrie.....</i>	121
II.5.2.a	Evolution de la conductivité électrique avec la saturation.....	121
II.5.2.b	Evolution de la conductivité électrique avec la température.....	125
II.6	PROTOCOLE EXPERIMENTAL.....	127
III	MODELISATION DES TRANSFERTS DE CHALEUR.....	129

III.1	MODELISATION DES TRANSFERTS DE CHALEUR	129
III.2	PROFIL DE LA COURBE DE SATURATION	130
III.3	ETUDE DE SENSIBILITE	132
IV	EXPERIENCES PRELIMINAIRES	134
IV.1	DETERMINATION DES CONDITIONS AUX LIMITES	134
IV.2	ESSAI SUR RENFORT SEC	135
IV.3	ESSAI SUR LIQUIDE MODELE SEUL	137
IV.4	ESSAI SUR COMPOSITE SATURE.....	138
V	RESULTATS ET IDENTIFICATION DE LA SATURATION	140
V.1	RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	140
V.2	IDENTIFICATION PAR LA THERMIQUE	143
V.2.1	<i>Protocole</i>	143
V.2.2	<i>Résultats</i>	144
V.2.3	<i>Incertitudes</i>	145
V.3	IDENTIFICATION PAR CONDUCTIMETRIE	146
V.3.1	<i>Conversion tension-saturation</i>	147
V.3.2	<i>Correction en température</i>	147
V.3.3	<i>Correction en temps</i>	147
V.4	COMPARAISON ET DISCUSSION	148
V.4.1.a	Comparaison des méthodes	149
V.4.1.b	Comparaison des injections.....	150
VI	CONCLUSION PARTIELLE.....	151

I Etude bibliographique

I.1 Contexte général

I.1.1 Lien entre propriétés mécaniques et taux de vide résiduel

RECEMMENT, les normes aéronautiques américaines ont obligé à rejeter toute pièce dont le taux volumique de vide excédait 2% [71]. Les propriétés mécaniques finales des composites à renforts fibreux sont en effet en grande partie dépendantes de la qualité (adhésion) et de la quantité (taux d'imprégnation) des contacts interfaciaux. Dans ce contexte, la présence de vides résiduels après consolidation du matériau est considérée comme le défaut le plus néfaste vis-à-vis des propriétés mécaniques recherchées. Ceux-ci créent des concentrations de contraintes localisées, qui deviennent des sites de nucléation pour les fissures et entraînent une perte considérable des propriétés en flexion, compression, ou résistance inter-laminaire. Un grand nombre d'auteurs, à commencer par Bascom et Romans [72] a établi des relations entre le taux de vides d'un composite et ses performances mécaniques, en particulier la résistance au cisaillement interlaminaire (Figure IV- 1). Ils ont montré que cette résistance était inversement proportionnelle aux taux de vides résiduel. Ainsi, si l'on passait industriellement d'un taux de vides de 5% à moins de 1% en volume, la résistance au cisaillement augmenterait de 50%.

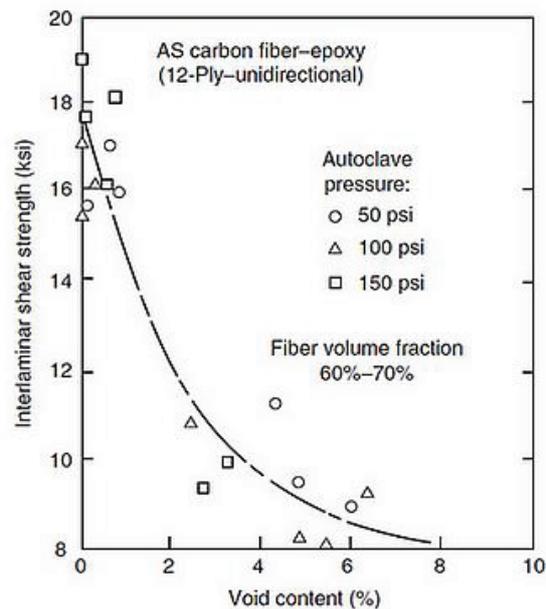


Figure IV- 1 : Influence du taux de vide volumique sur la résistance au cisaillement inter-laminaire d'un matériau composite. [73]

Enfin, on peut également citer parmi les nombreux travaux présents dans la littérature l'impact néfaste des vides sur le comportement en fatigue mécanique, en fatigue thermique, ainsi que sur la résistance à l'humidité. Par conséquent, il apparaît très important d'analyser finement les mécanismes de génération des vides pour mieux pouvoir limiter leur apparition en jouant sur les paramètres du procédé.

I.1.2 Les vides et leurs mécanismes de formation

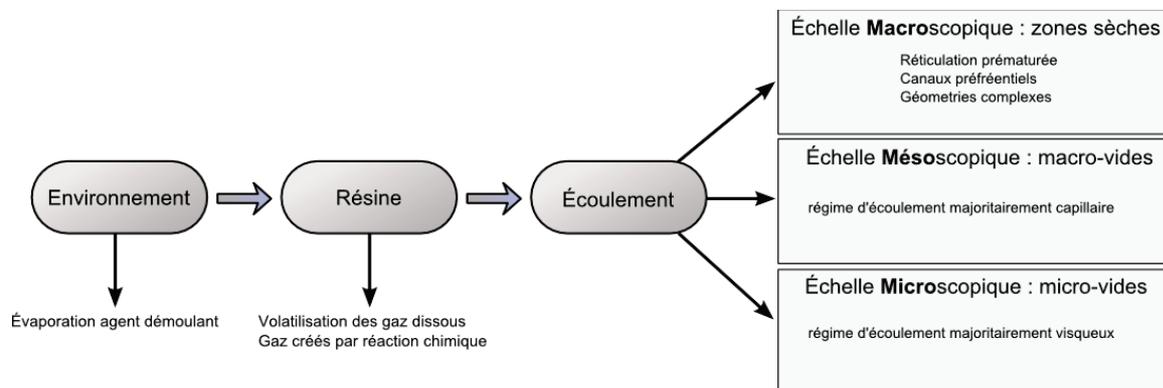


Figure IV- 2 : Les principales causes de formation des vides dans les procédés LCM.

Dans les procédés LCM, on peut distinguer 3 familles de vides, selon qu'ils soient induits par l'environnement, les conditions de préparation de l'injection, ou encore l'écoulement lui-même.

-Dans le premier cas, l'évaporation partielle de l'agent de démoulage peut entraîner la création d'espèces gazeuses, qui peuvent interagir avec le fluide et demeurer après cuisson.

-Dans le second cas, la résine et en particulier les conditions de sa préparation peuvent être à l'origine de défauts. Une étape de dégazage imparfaite peut amener la volatilisation des gaz dissous *in situ*. On peut également citer les éventuels dégagements gazeux provoqués par des réactions chimiques indésirables, que ce soit entre le catalyseur et la résine, ou encore entre la résine et la préforme fibreuse (cas d'un ensimage mal adapté par exemple).

-Enfin, il est indispensable de mentionner les emprisonnements d'air induits par l'écoulement de la résine dans le renfort, qui sont, pour une majorité de chercheurs, la cause principale de formation des vides dans les procédés LCM. En effet, le remplissage d'une cavité moulante contenant une préforme fibreuse implique le déplacement immiscible d'un fluide non mouillant (de l'air dans notre cas), par une résine liquide (fluide mouillant), et représente un écoulement de nature complexe, susceptible d'emprisonner des bulles d'air. Selon les mécanismes en jeu, ces défauts peuvent être macroscopiques, mésoscopiques, ou encore microscopiques (voir Figure IV- 2).

I.1.2.a Les zones sèches

Il s'agit de défauts macroscopiques dus généralement à une mauvaise stratégie d'injection, ou à une mauvaise maîtrise de la cinétique de réaction chimique. En effet, si la résine se solidifie pendant l'étape d'injection, on réalise un remplissage incomplet du moule. De la même manière, on peut également assister à l'apparition du phénomène de canaux préférentiels. Cette situation se produit lorsque la résine s'écoule plus rapidement en périphérie de la préforme, à proximité des parois du moule. La résine encercle alors une large zone de préforme sèche et crée une zone sèche. Ce type de défaut peut également être créé par cheminement préférentiel de la résine dans des zones de grande perméabilité,

qui peuvent être induites par la manipulation des préformes lors du drapage. Enfin, on peut citer une troisième et dernière raison à l'apparition de ces défauts : lorsque la géométrie de la pièce à injecter est particulièrement complexe, une position inadaptée des différents points d'injection peut entraîner des refermetures de front et la création de zones sèches. Même si la description et l'étude de ces défauts est récente, des outils numériques récents couplés au contrôle en ligne du procédé permettent d'en limiter l'apparition [74].

I.1.2.b Micro- et macro-vides

L'architecture à double-échelle des renforts fibreux dont nous avons discuté précédemment est en grande partie responsable de l'apparition des micro- et macro-vides. Selon que l'air est emprisonné entre les mèches ou au sein même d'une mèche, on parle respectivement de macro- ou de micro-vide.

Les macro-vides (Figure IV- 3): Communément appelés macro-vides bien qu'ils appartiennent à l'échelle mésoscopique, ces bulles ont une dimension de l'ordre du millimètre et une forme se rapprochant d'un ellipsoïde. Ce type de défaut apparaît lorsque les vitesses d'écoulement sont faibles à modérées. En effet, l'imprégnation des mèches est dominée par les forces capillaires. Lorsque l'écart entre la pression capillaire et la pression hydrodynamique est important, on observe au voisinage du front la formation d'une digitation (« fingering » en anglais), qui correspond à l'avancée préférentielle du fluide au cœur des mèches. On assiste donc à un phénomène d'avance-retard entre le front capillaire et le front dominé par les forces visqueuses, et par conséquent d'une zone partiellement saturée. Bréard *et al.* [75] explicitent ce phénomène en comparant les temps de parcours pour traverser une mèche ou un canal inter-mèches, en utilisant la définition de la vitesse donnée par la loi de Darcy

$$\Delta t_{l_t,T} : V_T = \frac{-1}{\varepsilon_{tow}} \frac{K_{tow}}{\mu} \nabla(P + P_c) \quad \text{Eq. (4.1)}$$

$$\Delta t_{l_t,C} : V_C = \frac{-1}{\varepsilon_{global}} \frac{K_{unsat}}{\mu} \nabla P \quad \text{Eq. (4.2)}$$

Si le temps de parcours dans les micropores (entre les fibres) est inférieur à celui dans les macropores (entre les mèches) ($\Delta t_{l_t,T} < \Delta t_{l_t,C}$), alors on observe une imprégnation préférentielle des mèches. Des écoulements transversaux peuvent ensuite être créés lorsque le fluide arrive à un obstacle (par exemple une mèche placée dans le sens perpendiculaire à l'écoulement), et provoquer par conséquent la formation de macro-vides.

En revanche, si $\Delta t_{l_t,T} > \Delta t_{l_t,C}$, la situation s'inverse, et on assiste alors à l'apparition de micro-vides.

Les micro-vides (Figure IV- 4) : Historiquement, Bascom et Romans [72] ont été parmi les premiers à vérifier l'existence de vides dans des composites stratifiés en réalisant des observations microscopiques sur des coupes d'échantillons réticulés. Lorsque le débit ou la pression d'injection est plus important(e), les forces capillaires deviennent négligeables devant les forces visqueuses. L'écoulement remplit en priorité les macropores, c'est-à-dire les espaces autour des mèches, ce qui s'accompagne d'un risque de formation des micro-vides à l'intérieur des torons. Ces bulles présentent généralement une forme de cylindre très allongé (dans le sens de la mèche), dont le diamètre est proche de quelques micromètres. La Figure IV- 5 résume les deux scénarios possibles, initialement proposés par Chan *et al.*[76].

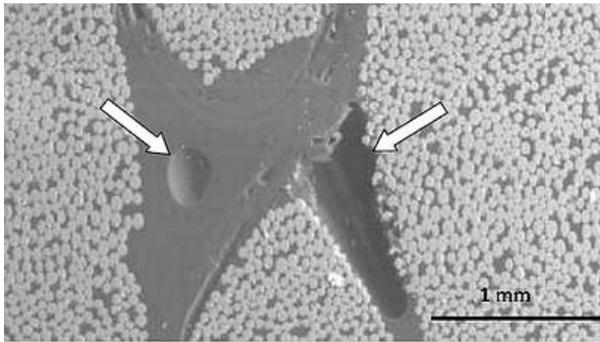


Figure IV- 3 : Exemples de macro-vides entre plusieurs mèches [77].

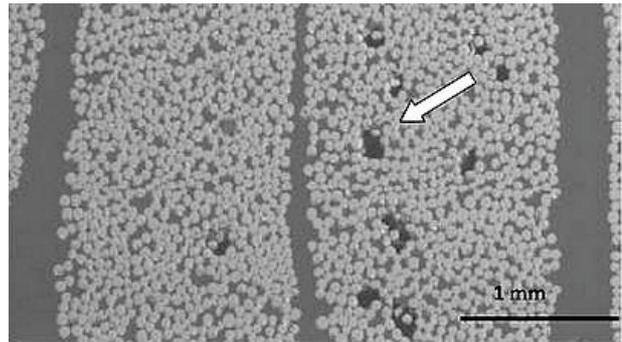


Figure IV- 4 : Exemples de micro-vides au sein d'une même mèche [77].

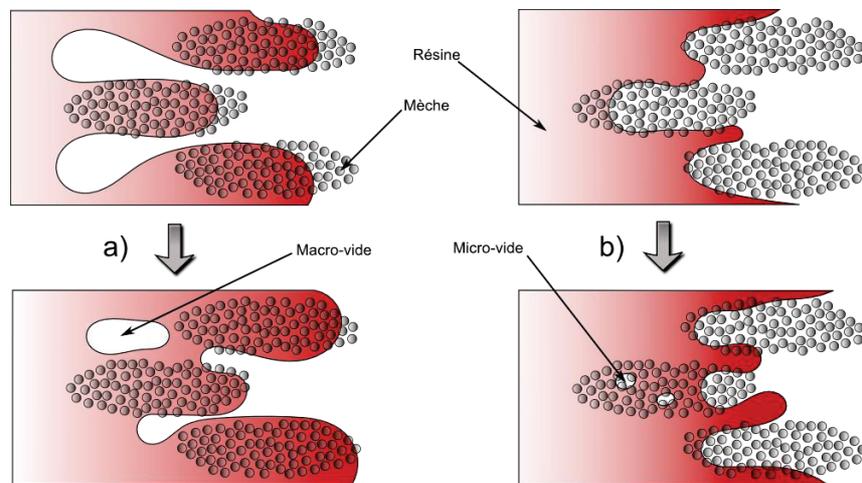


Figure IV- 5 : Schéma représentant les mécanismes de formation des macro-vides (a), lorsque la vitesse est faible, et des micro-vides (b), lorsque la vitesse est plus élevée.

I.1.2.c Nombre capillaire optimal

Enfin, lorsque $\Delta t_{l,T} \approx \Delta t_{l,C}$, les temps de parcours sont équivalents dans la mèche et dans les macropores. Ainsi, de nombreux auteurs [78], [79], [80], [81] ont montré que, pour une combinaison donnée d'un renfort et d'une résine, il existait une vitesse d'imprégnation idéale pour laquelle la quantité de vide totale créée était minimale. Afin de quantifier la différence entre ces deux types d'écoulement, Patel *et al.* [82] ont proposé la définition d'un nombre adimensionnel appelé nombre capillaire et noté Ca . Cette grandeur permet de relier les paramètres d'injection aux propriétés du liquide et du renfort, tel que :

$$Ca = \frac{\mu V_l}{\gamma_{lv}} \quad \text{Eq. (4.3)}$$

où μ est la viscosité dynamique du liquide ($Pa.s$), V_l sa vitesse moyenne globale (m/s), et γ_{lv} la tension de surface liquide-vapeur (N/m). Certains auteurs [82] préfèrent quant à eux utiliser un nombre capillaire modifié Ca^* , incluant l'angle de contact θ pris par le liquide sur le renfort.

$$Ca^* = \frac{\mu V_l}{\gamma_{lv} \cos \theta} \quad \text{Eq. (4.4)}$$

Il faut noter toutefois que l'angle de contact θ est un angle statique mesuré à l'équilibre. Cette valeur diffère par nature de l'angle de contact dynamique, qui est plus pertinent pour une injection, c'est la raison pour laquelle l'utilisation du nombre capillaire modifié reste discutable.

Dans un article récent, Lebel [83] propose un modèle prédictif afin de calculer un nombre capillaire modifié optimal qui minimise la formation des vides.

$$Ca^*_{opt} = \frac{f_{geo}}{2k_0} \frac{d_f \Phi_m}{\tau^2 L_c (1 - \Phi_m)} \quad \text{Eq. (4.5)}$$

où d_f , Φ_m , τ et L_c sont respectivement le diamètre des fibres, la porosité microscopique des mèches, leur tortuosité et la longueur caractéristique de l'unité élémentaire du renfort tissé. f_{geo} et k_0 sont des constantes géométriques qui dépendent de la distribution des tailles de pore, de la direction de l'écoulement par rapport à l'orientation des mèches, et de l'armature de tissage des mèches.

En représentant l'évolution du taux volumique de vides en fonction du nombre capillaire, Patel [82] montre que les courbes sont similaires quelque soit le fluide utilisé. Celles-ci prennent une forme caractéristique en V, délimitant les domaines d'apparition des macro-vides (faibles nombre capillaires) et ceux des micro-vides (nombres capillaires plus élevés). Elles définissent également une vitesse d'injection pour laquelle le taux de vides créés est minimal (Figure IV- 6). Cette valeur optimale est généralement obtenue pour un nombre capillaire allant de 10^{-2} à 10^{-3} selon les auteurs. Ainsi, pour un couple {liquide/préforme}, un modèle phénoménologique décrit l'évolution des taux de vides macroscopiques et microscopiques en fonction du nombre capillaire modifié selon les équations suivantes :

$$\Phi_{M,v} = -A - B \ln Ca^* \quad \text{Eq. (4.6)}$$

$$\Phi_{\mu,v} = A' + B' \ln Ca^* \quad \text{Eq. (4.7)}$$

où A, B, A' et B' sont des constantes positives dépendantes du couple {liquide/préforme} choisi.

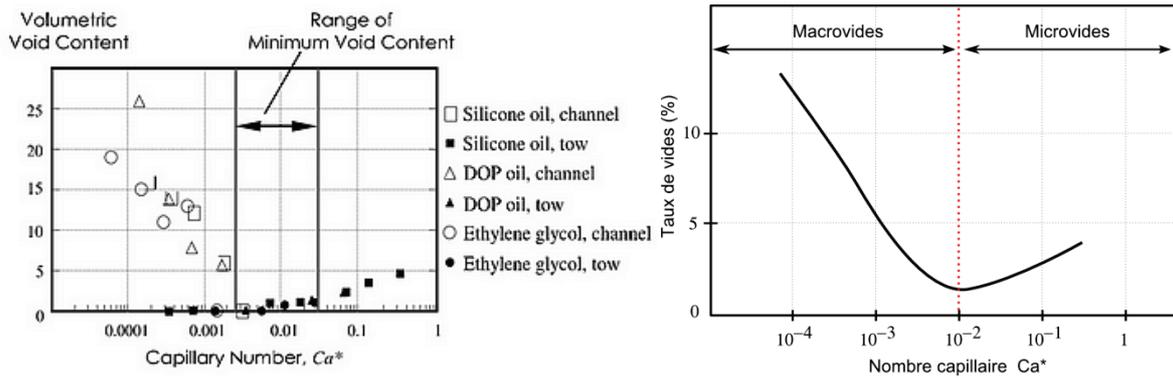


Figure IV- 6 : Evolution du taux de vides en fonction du nombre capillaire modifié selon Patel (à gauche), et représentation schématique des zones de création des micro- et macro-vides (à droite).

Lors d'une injection réalisée à pression constante, on constate généralement une distribution singulière de vides après imprégnation. En effet, on retrouve généralement des micro-vides en grand nombre en début de préforme et un surcroît de macro-vides à proximité de l'évent. Cet effet a été constaté par Lundstrom [84], ainsi que Leclerc *et al.* [85], qui l'ont associé à la décroissance de la vitesse au cours du temps. A pression constante, le nombre capillaire décroît en effet lui aussi, ce qui apporte du crédit au modèle de Patel et à la courbe en V.

Plus récemment, les travaux de Ravey [15-16] définissent une vitesse optimale d'injection à partir d'expériences de montées capillaires (Figure IV- 7). Faisant le postulat que la vitesse capillaire est limitante lors d'une injection LCM, il estime que la vitesse optimale est atteinte lorsque la vitesse capillaire est maximale. Il s'agit donc de mesurer la valeur initiale de la vitesse lors d'une montée capillaire.

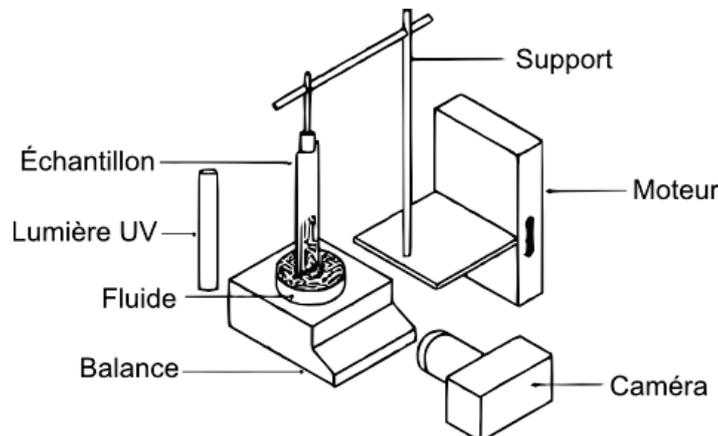


Figure IV- 7 : Banc expérimental dédié aux montées capillaires [86]

I.1.3 Devenir des vides créés

Dès lors que des bulles d'air ont été créées au voisinage du front de matière, leur diamètre et leur position peuvent varier au cours du temps. Lorsqu'une bulle gazeuse se retrouve enfermée, un équilibre de pression se crée entre la pression hydrostatique du fluide et la pression interne du gaz dans la bulle. Le front de liquide s'étant éloigné, la pression dans la cavité moulante continue d'augmenter, induisant

une diminution du volume de la bulle. Par conséquent, si la mèche n'est pas complètement imprégnée, la résine continue de saturer celle-ci, même après le passage du front.

De plus, une fois leur taille diminuée, ces bulles peuvent se déplacer dans la direction de l'écoulement. Généralement transportées par l'écoulement, il peut même arriver de voir des bulles migrer à contre-courant. Enfin, la coalescence de bulles ou encore la migration de celles-ci de l'intérieur de la mèche vers les macro-canaux peuvent également se produire. Park *et al.* [71], en 2011, proposent une modélisation très complète de la formation des vides, de leur transport, ainsi que la saturation des mèches.

I.1.4 Solutions employées pour réduire le taux de vide

Industriellement, plusieurs techniques sont employées afin de réduire le taux de vides dans les pièces composites produites. En voici une liste non exhaustive.

-Dégazage de la résine avant injection : le dégazage consiste à appliquer un vide primaire sur le pot de résine afin de faciliter la dissolution des vides. Cette technique a notamment été étudiée par Lundstrom [84].

-Injection assistée par le vide : elle consiste à imposer, au moyen d'une pompe à vide connectée à l'évent, un vide primaire pendant l'injection. La pression faible imposée au voisinage du front facilite leur dissolution et leur migration. Hayward et Harris [88] ont montré l'intérêt d'utiliser l'assistance du vide dans les procédés RTM, même si ce moyen ne permet pas d'éliminer l'intégralité de ce type de défaut.

-Gavage : également appelé « bleeding », ce procédé consiste à poursuivre l'écoulement lorsque la résine est évacuée par l'évent, c'est-à-dire lorsque le remplissage du moule est fini. Parfois même, le débit d'injection est brusquement augmenté pour déloger les vides qui restent bloqués. Cette technique permet d'évacuer les macro-vides présents majoritairement à proximité de l'évent. Cette solution est couramment employée dans l'industrie, même si elle s'avère couteuse en temps et en matière première.

-Pression de compactage : Après remplissage de la cavité moulante, l'évent est clampé, et une surpression est imposée au point d'injection. Celle-ci permet la diminution du volume des vides au sein de la pièce, et donc une augmentation de la saturation. Dans une moindre mesure, elle peut également entraîner une dissolution des gaz dans la résine par diffusion.

-Contrôle de la vitesse d'injection : A débit imposé, et en supposant que l'on connaît la loi reliant le taux de vides au nombre capillaire pour les matériaux que l'on considère, il est possible d'adapter le débit pour obtenir une vitesse d'injection aussi proche que possible de la vitesse optimale. Cependant, ces débits sont bien souvent beaucoup plus faibles que ceux utilisés dans l'industrie. Par conséquent, le temps de cycle du procédé est allongé et celui-ci devient moins rentable. Lorsque l'injection est pilotée en pression, il est théoriquement possible de faire varier celle-ci au cours du remplissage pour garantir une vitesse de résine stable, mais ceci impose de connaître la valeur de la vitesse optimale pour le couple {renfort/liquide} considéré. Pour les pièces 3D, cette méthode n'est pas forcément applicable car si la section de la cavité moulante évolue, la vitesse du fluide est modifiée en conséquence, et le contrôle n'est plus possible.

I.1.5 Mesure de la saturation

Parmi toutes les méthodes expérimentales ayant permis de quantifier la saturation des matériaux composites, il faut distinguer les mesures *a posteriori*, c'est-à-dire après imprégnation et réticulation, et les mesures en ligne, donc réalisées pendant l'injection. Les mesures *a posteriori* sont généralement réalisées par découpe des échantillons suivies d'observations microscopiques. Elles permettent de déterminer un taux de vide résiduel, donc une saturation finale. L'élaboration des courbes dont nous avons parlé dans la partie précédente a été rendue possible par ces protocoles, dont nous ne décrivons pas davantage les détails. S'il existe de très nombreux travaux à propos de ces mesures *a posteriori*, très peu ont pu, en revanche, quantifier la saturation de renforts pendant l'injection, l'avantage étant l'obtention d'une courbe de saturation dynamique.

I.1.5.a Emission d'ondes ultrasonores

Cette technique est une méthode de contrôle non destructif très répandue dans l'aéronautique, qui permet la détection de défauts à l'intérieur d'un matériau. Elle consiste à émettre des ondes ultrasonores dans le milieu considéré, et à enregistrer les échos résultants. En effet, lorsque les ondes rencontrent une interface délimitant deux milieux ayant des impédances acoustiques différentes, il y a réflexion. Même s'il s'agit d'une mesure réalisée classiquement *a posteriori*, de récents travaux [89] ont permis la détection de bulles dans des écoulements. Samet *et al.* [89] parviennent à détecter la présence des bulles et à mesurer leurs vitesses, mais cette technique n'est pas adaptable aux matériaux composites, car il est difficilement possible de discerner l'écho de la préforme de celui des défauts.

I.1.5.b Observations optiques

Ruiz *et al.* [90] utilisent le principe de la transmission de la lumière visible pour quantifier la saturation d'un renfort constitué de fibres de verre. Dans ce dispositif, une source de lumière blanche éclaire un moule RTM dont les deux moitiés sont faites de verre (Figure IV- 8). Une caméra haute résolution capte la lumière transmise à travers le renfort de l'autre côté du moule. L'ensemble est placé dans une chambre noire. Les injections sont réalisées à pression ou à débit constant. L'analyse de la saturation du renfort est basée sur une reconstruction tomographique 2D grâce à une loi de Beer-Lambert modifiée.

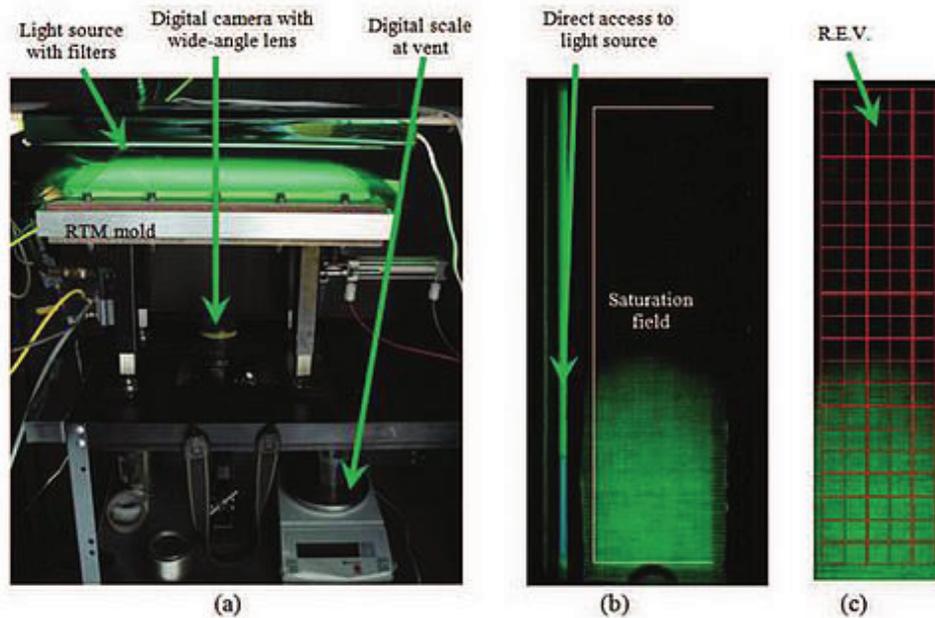
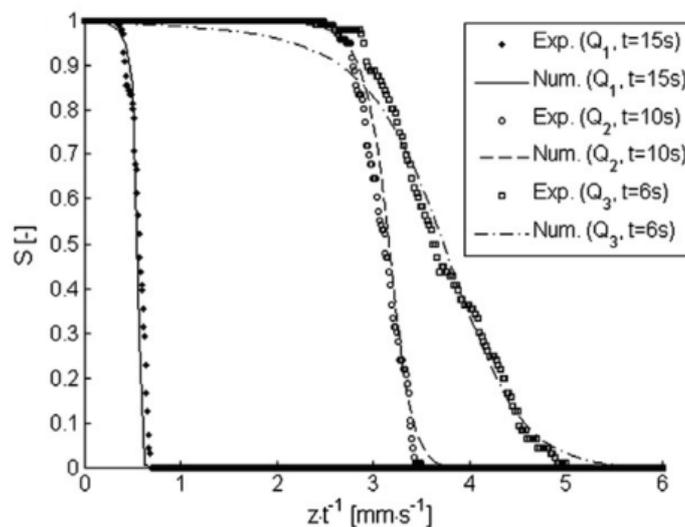


Figure IV- 8 : Dispositif de mesure de la saturation par transmission de la lumière visible : (a) Moule RTM avec la caméra munie de ses filtres. (b) Image de la saturation d'un renfort de verre par une résine vinylester. (c) Division des régions étudiées en volume élémentaires représentatifs. [90]

Les résultats mettent en évidence l'existence de conditions optimales d'injection qui minimisent la formation de vides par emprisonnement d'air. Ils confirment également la répartition des macro et micro-vides dont nous avons parlé précédemment.

Les travaux de Nordlund et Michaud [91] sont eux aussi basés sur une observation optique de l'injection. Ils ont mis en place un dispositif permettant d'injecter une résine à débit constant dans un moule transparent orienté verticalement. Les acquisitions vidéo sont ensuite transformées en niveau de saturation par analyse d'image (Figure IV- 9). Cette approche a été validée par une analyse microscopique complémentaire *a posteriori* dans laquelle les échantillons réticulés sont découpés et observés au microscope.



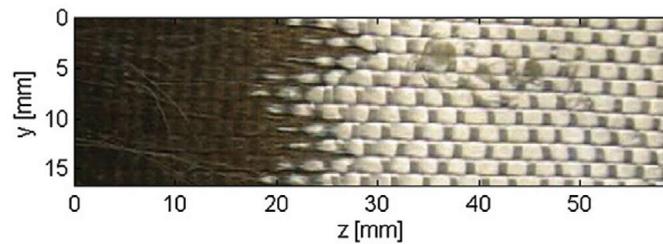


Figure IV- 9 : Comparaison des saturations mesurées et calculées pour différents nombres capillaires, à un instant donné (en haut). Image tirée de l'acquisition vidéo à $t=10s$ (en bas). [91]

Cette approche expérimentale a été couplée avec une modélisation de la saturation en se basant sur le modèle de Van Genuchten [92].

Citons enfin Seto et son équipe [93], qui emploient eux aussi une technique similaire d'analyse d'image pour la reconstruction du taux de vides dans une préforme bidirectionnelle anisotrope.

I.1.5.c Utilisation de capteurs conductimétriques

Labat [94] développe en 2001 un capteur de conductivité électrique constitué de deux électrodes de laiton. Ce capteur exploite les fortes différences de conductivité entre le liquide, l'air et la fibre.

La résistivité électrique ρ ($\Omega.m$) d'un matériau est une propriété intrinsèque représentant sa faculté à s'opposer à la circulation d'un courant électrique. Elle est reliée à la résistance R par la relation suivante :

$$R = \frac{\rho L}{S} \quad \text{Eq. (4.8)}$$

où L et S sont la longueur et la section d'une pièce rectiligne.

Par extension, la conductivité (exprimée en Siemens/m) et la conductance électrique (Siemens) sont réciproquement les inverses de la résistivité et de la résistance.

$$\sigma = \frac{1}{\rho} \quad \text{Eq. (4.9)}$$

$$G = \frac{1}{R} \quad \text{Eq. (4.10)}$$

La conductance électrique du milieu poreux situé entre les deux électrodes est mesurée, et reliée par la suite au taux de remplissage de celui-ci, donc à la saturation. Labat [94] met au point avec soin un fluide modèle de conductivité électrique non nulle, dont les propriétés (tension de surface, angle de contact, viscosité et masse volumique) se rapprochent de celles d'une résine classique. Il réalise ensuite de nombreuses injections à débit ou pression imposée, dans des préformes fibreuses de verre, qui sont considérées électriquement isolantes. L'obtention de l'évolution de la saturation en fonction du temps et de la position (voir Figure IV- 11) démontre la faisabilité de la mesure par conductimétrie électrique.

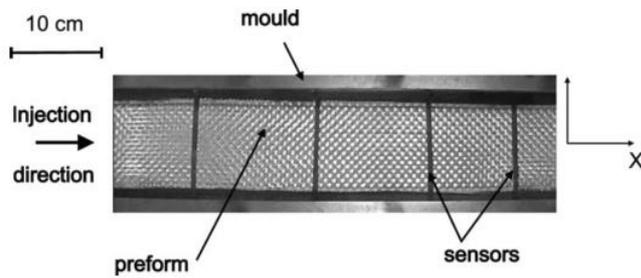


Figure IV- 10 : Vue du dessus du moule et des capteurs [94]

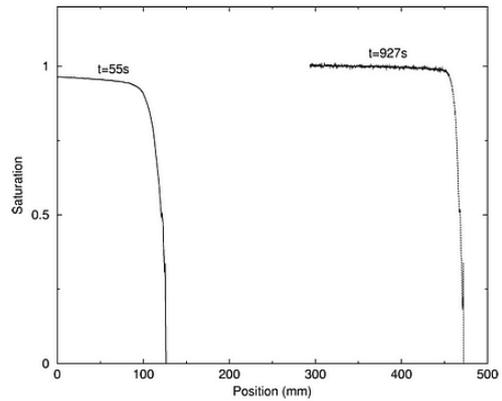


Figure IV- 11 : Evolution de la forme du front de résine en fonction de la position longitudinale x. [94]

I.1.5.d Utilisation de capteurs diélectriques

Yenilmez *et al.* [95] proposent en 2009 une étude expérimentale très détaillée dans laquelle l'effet diélectrique est utilisé pour des applications LCM. En présence d'un matériau diélectrique, la permittivité électrique représente la réponse d'un milieu donné à un champ électrique appliqué. Le moule utilisé dans cette étude comporte 10 électrodes de cuivre sur la partie inférieure et 5 électrodes sur la partie supérieure, ce qui forme un réseau de 50 capteurs diélectriques. Ceux-ci permettent de détecter le passage du front de résine, même si la saturation n'est pas mesurée dans ce cas.

Ils étudient également le phénomène d'effet de bord dans les capteurs diélectriques. Du fait de la géométrie des capteurs, le champ électrique n'est pas uniforme en tout point en raison des bords d'électrodes. Il propose d'ailleurs un montage alternatif incluant une électrode de garde placée à la périphérie de la zone de mesure (Figure IV- 13).

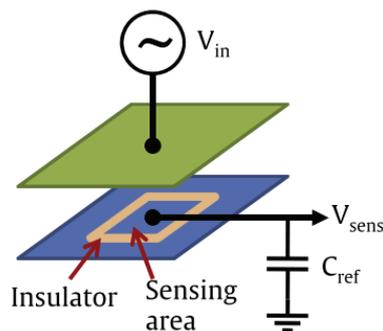


Figure IV- 12 : Configuration du capteur sans électrode de garde

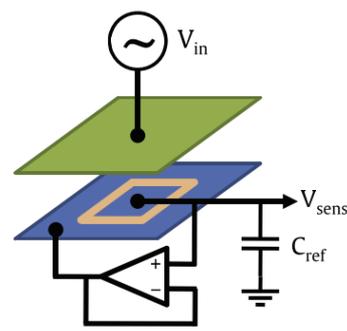


Figure IV- 13 : Configuration électrique avec électrode de garde

La sensibilité du capteur est définie par l'équation suivante :

$$\frac{V_{sens}}{V_{in}} = \frac{C_{sens}}{C_{ref} + C_{sens}} \quad \text{Eq. (4.11)}$$

Guéroult [77] poursuit ces travaux en mettant au point un capteur de permittivité électrique, dont le schéma électrique est présenté sur la Figure IV- 14. Alors que la méthode conductimétrique est

inopérante sur des préformes de carbone, car conductrices de l'électricité, ce capteur s'adapte aussi bien aux renforts de verre que de carbone. Malgré tout, la mesure est pénalisée par de nombreuses sources d'incertitudes, en particulier l'influence de la température, de l'humidité, de la pression, et de l'étalonnage, dont Guéroult dresse l'inventaire.

En se basant sur le modèle de Maxwell, il décrit la permittivité globale du système comme une fonction des permittivités de chaque composant (air, liquide et fibre). La permittivité globale s'écrit de la manière suivante :

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_b + \frac{\frac{1}{3}f_{fibre}(\varepsilon_{fibre} - \varepsilon_b) \sum_{j=1}^3 \frac{\varepsilon_b}{\varepsilon_b + N_{ij}(\varepsilon_{fibre} - \varepsilon_b)}}{1 - \frac{1}{3}(\varepsilon_{fibre} - \varepsilon_b) \sum_{i=1}^3 \frac{N_{ij}}{\varepsilon_b + N_{ij}(\varepsilon_{fibre} - \varepsilon_b)}} \quad \text{Eq. (4.12)}$$

$$\text{avec } \varepsilon_b = \varepsilon_{liquide} + 2f_{air} \frac{\varepsilon_{air} - \varepsilon_{liquide}}{\varepsilon_{air} + \varepsilon_{liquide} - f_{air}(\varepsilon_{air} - \varepsilon_{liquide})} \quad \text{Eq. (4.13)}$$

$$\text{et } \left\{ \begin{array}{l} N_1 = \frac{1}{2} \\ N_2 = 0 \\ N_3 = \frac{1}{2} \end{array} \right\} \quad \text{Eq. (4.14)}$$

où $\varepsilon_{liquide}$ est la permittivité du liquide, ε_{fibre} celle de la fibre, ε_{air} celle de l'air, et ε_b celle du mélange air-liquide. Les N_{ij} sont les facteurs de dépolarisation qui sont des coefficients qui dépendent de la géométrie, et f_i la fraction volumique de la phase i .

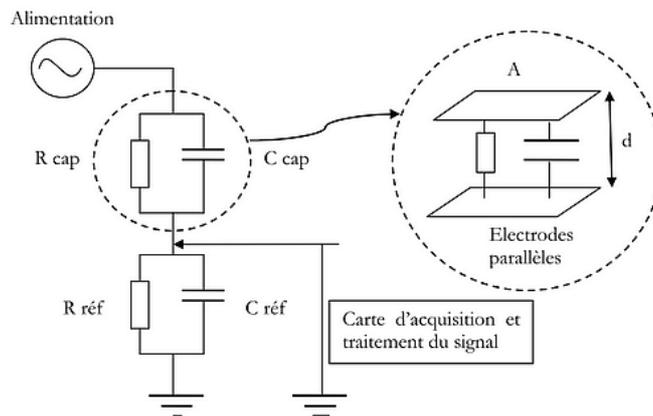


Figure IV- 14 : Schéma du montage électrique du capteur diélectrique

I.1.6 Modélisation de la saturation

La modélisation de la formation des vides dans les procédés LCM s'avère très complexe en raison de la nature des procédés de fabrication, qui impliquent des transferts de chaleur, de masse, ainsi des réactions chimiques qui peuvent être concomitantes. Ces transferts ont lieu dans des systèmes polyphasiques dont les propriétés des matériaux sont dépendantes du temps.

Jusqu'à présent, la majorité des modélisations d'injection en LCM s'est restreinte à la loi de Darcy monophasique, qui relie la vitesse d'imprégnation globale à la perméabilité du renfort et au gradient de pression imposé. Cette approche macroscopique néglige bien entendu la formation et le transport des vides, donc la formation d'une zone partiellement saturée. La loi de Darcy s'écrit

$$\bar{U} = \frac{-\bar{K}}{\mu\phi} \nabla P \quad \text{Eq. (4.15)}$$

Où \bar{U} est la vitesse moyenne interstitielle d'infiltration ($m.s^{-1}$), K le tenseur de perméabilité exprimé en m^2 , μ la viscosité dynamique du fluide ($Pa.s$), ϕ la porosité du milieu poreux, et ∇P le gradient de pression ($Pa.m^{-1}$).

Dans la littérature, il existe principalement deux approches qui permettent de prendre en compte le scalaire de saturation lors de l'écoulement immiscible de deux fluides dans un milieu poreux. Les différences entre ces deux schémas numériques est décrite dans Bréard *et al.* [81]. La première vient des recherches menées pour l'industrie pétrolière, ainsi que du domaine de l'hydrologie. En effet, dans le premier cas, on injecte généralement de l'eau sous pression dans la roche, qui joue le rôle de milieu poreux, afin de pousser les hydrocarbures vers la surface. Dans le second cas, on cherche par exemple à étudier la dynamique de contamination d'un réservoir d'eau souterraine par un polluant. L'analogie avec la physique de l'imprégnation dans les procédés LCM est donc bien présente. La seconde approche se veut plus simple dans le sens où elle ne décrit pas un écoulement global, mais considère celui-ci comme la somme de deux écoulements : celui dans les macro-pores et celui dans les micropores.

Une présentation synthétique de ces deux approches est effectuée ici, la première étant détaillée dans le chapitre suivant.

I.1.6.a Modélisation par des perméabilités relatives

Le flux de résine dans la zone partiellement saturée peut être traité comme un problème d'écoulement diphasique dans un milieu poreux. Les formulations mathématiques prennent en compte les interactions entre la résine et l'air comme un écoulement diphasique. La perméabilité de la loi de Darcy est remplacée par des paramètres qui tiennent compte de la présence du ou des autres fluides. Ces paramètres appelés perméabilités relatives sont fonction de la saturation. La loi de Darcy multiphasique s'écrit de la manière suivante pour la phase α :

$$u_\alpha = -\frac{k_{r\alpha}(S_\alpha)K}{\mu_\alpha} \nabla P_\alpha \quad \text{Eq. (4.16)}$$

où u_α est la vitesse de la phase α , $k_{r\alpha}$ sa perméabilité relative, μ_α sa viscosité, et K la perméabilité géométrique du renfort.

Cette équation est couplée avec une équation dérivant d'un bilan de masse traduisant l'évolution de la saturation dans un milieu de porosité ϕ :

$$\text{Eq. (4.17)}$$

$$\text{div } u_\alpha = -\phi \frac{\partial S_\alpha}{\partial t}$$

Si on néglige les forces capillaires intervenant pendant l'injection, l'équation de saturation se ramène à une simple équation d'advection, c'est-à-dire de transport du front de liquide. Si celles-ci sont incluses dans la modélisation, l'équation à résoudre devient de type advection-diffusion. Elle est détaillée dans le chapitre V.

Cette approche a été traitée par Michaud [91], en utilisant le modèle de Van Genuchten [92] pour l'expression des perméabilités relatives à l'air et à la résine, et a donné des résultats très satisfaisants, même si les méthodes numériques classiques utilisées pour résoudre ces équations font apparaître des difficultés numériques.

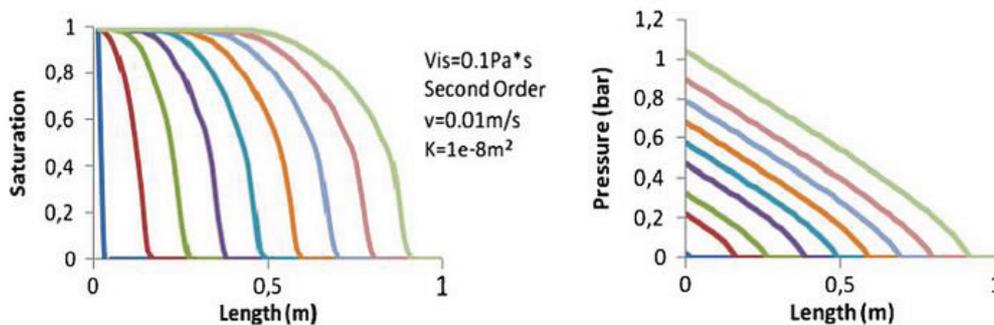


Figure IV- 15 : Profils numériques de saturation et de pression pour une injection 1D à débit constant obtenus par Garcia [96]

Citons également Garcia *et al.* [96, 97], qui mettent en place une technique de limiteur de flux afin de résoudre ces problèmes numériques. Les profils de saturation calculés sont ensuite comparés à des données expérimentales afin de valider la méthode numérique.

I.1.6.b Modélisation par loi de Darcy avec source

La deuxième approche [75, 81, 98] consiste à distinguer l'écoulement dans les macro-pores de celui dans les micropores. On considère tout d'abord un écoulement saturé de type écoulement-piston dans les macro-canaux constitués par les espaces inter-mèches. L'écoulement de la résine dans les mèches est pris en compte par un terme source, qui correspond à la saturation progressive des mèches seules. Ce terme source est fonction de la pression capillaire et de la perméabilité intrinsèque de la mèche.

L'équation qui régit le transport de la saturation est donc la suivante :

$$\frac{\partial S}{\partial t} + \frac{q}{\phi} \nabla S = D \nabla^2 S - Q_S \quad \text{Eq. (4.18)}$$

$$\text{avec } D = \alpha_d q \quad \text{Eq. (4.19)}$$

où Q_S est un terme puits dépendant du nombre capillaire, q la vitesse et α_d le facteur d'effet dispersif.

Ce modèle de transport d'un écoulement insaturé a été confronté avec succès à des résultats expérimentaux [75].

II Dispositif expérimental

L'objectif de la démarche expérimentale décrite dans la suite est de parvenir à détecter et quantifier le profil de saturation d'un renfort en cours d'une injection LCM. Pour ce faire, notre intention est de tirer parti des forts contrastes de propriétés thermiques qui existent entre le renfort sec et le renfort saturé, en utilisant une métrologie thermique adaptée que nous allons décrire dans cette partie.

Une première expérience de faisabilité réalisée sur un moule simplifié a permis de mettre en évidence les critères requis pour la bonne conduite de l'étude. Parmi ceux-ci, le débit d'injection devait pouvoir être imposé avec la plus grande précision possible. Afin de satisfaire ces conditions, il a été décidé de modifier un banc expérimental déjà existant et dédié à des mesures de perméabilité plane de préformes fibreuses, présent au sein du Laboratoire Ondes et Milieux Complexes (LOMC) situé au Havre. La partie suivante s'attache à décrire le dispositif expérimental ainsi que les matériaux utilisés.

II.1 Présentation générale

Le dispositif permet de réaliser l'injection unidimensionnelle d'un liquide dans une préforme fibreuse à débit contrôlé. Il comprend donc un système d'injection et un moule composé de trois parties :

-une plaque inférieure en acier (voir Figure IV- 16) dont la position suivant l'axe vertical est réglable finement au moyen de six vis et de plusieurs comparateurs. Sa hauteur, comprise entre 1 et 6 mm, définit l'entrefer du moule et donc le taux de fibres au sein de la cavité moulante. Cette plaque est comprise dans un bâti lui aussi en acier.

-un échangeur en aluminium vissé sous la surface inférieure de la plaque en acier. Un thermorégulateur de type Lauda[®] assure une circulation d'eau à température constante dans les canaux de cet échangeur.

-une plaque supérieure en verre borosilicaté, permettant de conserver une excellente visibilité de l'injection en cours.

Une vue d'ensemble du moule est présentée sur la Figure IV- 17.

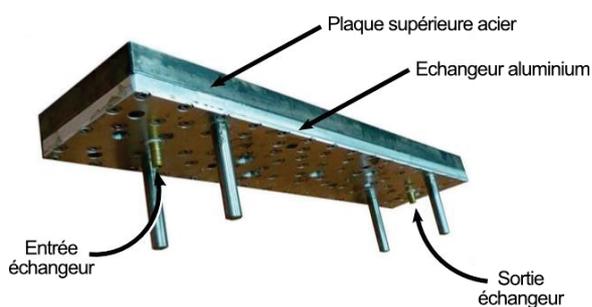


Figure IV- 16 : Vue de la plaque inférieure et de l'échangeur



Figure IV- 17 : Vue générale du moule fermé

Les dimensions classiques des préformes utilisées sont d'environ 400 mm de longueur pour 100 mm de largeur. L'étanchéité du moule est assurée par un joint en silicone disposé à la périphérie de la préforme.

Ce dispositif permet une injection à débit constant grâce à un système d'injection constitué d'une seringue doseuse montée sur une machine d'essais mécaniques de type INSTRON K7637. Cette machine est utilisée en compression et permet un contrôle du débit volumique avec une précision à moins de 0,1%, en sachant que la pression maximale acceptable dans le moule est limitée à 0,3 MPa environ.

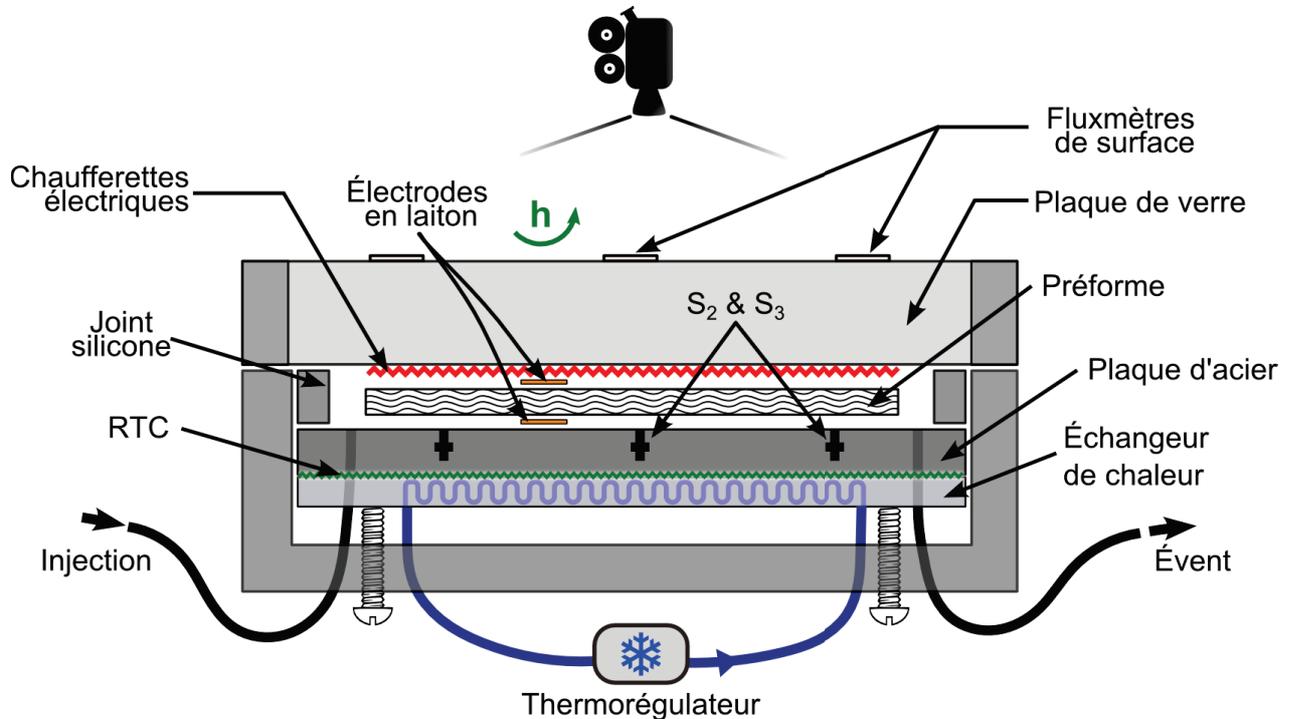


Figure IV- 18 : Schéma complet du banc expérimental

Le but de cette étude est de quantifier la saturation du renfort au moyen d'une méthode thermique, ce qui implique d'exciter thermiquement le matériau poreux en cours de remplissage. Ceci est rendu possible grâce à l'utilisation de chauffettes électriques qui sont capables de diffuser un flux surfacique constant dans le renfort fibreux. Il s'agit de chauffettes transparentes et adhésives ThermalClear de la société Minco, constituées d'un fil de cuivre inclus entre deux couches de polyester de grade optique. Les propriétés des éléments chauffants sont rassemblées dans le Tableau 1. Ces chauffettes sont collées sur la partie inférieure de la plaque de verre et sont donc à l'interface entre le verre et la préforme fibreuse. La sollicitation thermique de cette dernière s'effectue donc par-dessus, ce qui permet de limiter les phénomènes de convection au sein de la cavité moulante. La densité de flux dissipée dans l'ensemble des chauffettes est mesurée avec précision, en enregistrant au cours du temps la tension à leurs bornes.

$$\varphi = \frac{R i^2}{S} = \frac{U i}{S} \quad \text{Eq. (4.20)}$$

où U est la tension aux bornes d'une chauffette, i l'intensité qui la traverse, et S sa surface.

Dimensions (mm ²)	Épaisseur (mm)	Diamètre des fils (µm)	Résistance électrique (Ω)	Flux surfacique maximal (W/m ²)
101,6x127	0,25	30	31,2	13000

Tableau 1 : Propriétés des éléments chauffants transparents

II.2 Instrumentation

II.2.1 Instrumentation thermique

La plaque inférieure permet l'intégration de capteurs de flux thermique. Ces capteurs sont réalisés dans le même matériau que la plaque (acier 40CMD8) afin de limiter leur intrusivité, et sont constitués de trois micro-thermocouples de $25 \mu\text{m}$ de diamètre placés à différentes positions dans l'épaisseur (Figure IV- 19). La mesure est indirecte, puisqu'elle implique de calculer les flux pariétaux *a posteriori* en utilisant une méthode inverse basée sur l'algorithme de Beck [99] , et en supposant le flux 1D.

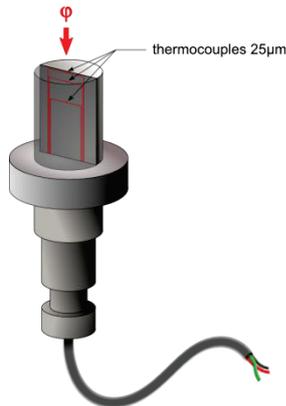


Figure IV- 19 : Schéma d'un capteur de flux thermique

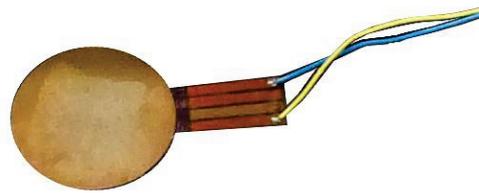


Figure IV- 20 : Capteur de flux thermique à gradient tangentiel

Trois de ces capteurs que l'on nommera par la suite S_1 , S_2 et S_3 sont placés dans le moule, dans le sens de l'écoulement et à différentes positions, c'est-à-dire à respectivement 85 , 210 et 335 mm du début de la préforme. Ils enregistrent la réponse thermique du milieu poreux à travers l'évolution des flux thermiques transverses pariétaux.

La partie supérieure de la plaque de verre est également instrumentée, puisqu'elle est munie de trois capteurs de flux thermique à gradient tangentiel (Figure IV- 20) et de 3 thermocouples. Ces capteurs sont particulièrement adaptés pour quantifier les échanges de chaleur entre une surface et un fluide environnant. Ils serviront par la suite à déterminer le coefficient d'échange convectif de la face supérieure avec l'air ambiant, et donc les pertes thermiques par le verre.

De plus, de nombreux micro-thermocouples de type K sont disposés à différents endroits du banc, afin de déterminer avec soin les conditions aux limites. Certains d'entre eux sont même intégrés dans la préforme entre deux plis de renfort. Leur diamètre ($50 \mu\text{m}$) et leur positionnement (thermocouples bout-à-bout) sont choisis de manière à ne pas entraver l'écoulement du fluide, ni à modifier localement le taux volumique de fibres. Le Tableau 2 regroupe l'ensemble des dénominations, du type et des emplacements de l'ensemble des thermocouples du dispositif.

Dénomination	Type	Emplacement
T_{V1}	K - $80\mu\text{m}$	Température de surface de la plaque de verre, à la verticale du capteur S_1
T_{V2}	K - $80\mu\text{m}$	Température de surface de la plaque de verre, à la verticale du capteur S_2
T_{V3}	K - $80\mu\text{m}$	Température de surface de la plaque de verre, à la verticale du

capteur S ₃		
T _{échangeur}	K – 200µm	Température à l’interface échangeur-plaque acier
T _{ambiant}	K – 200µm	Température de l’air ambiant
T _{entrée}	K - 50µm - bout à bout	Température du liquide en amont de la préforme
T _{préforme}	K - 50µm - bout à bout	Température à cœur de préforme, à 312 mm
T _{élec-bas}	K – 50µm	Température de l’électrode conductimétrique inférieure
T _{élec-haut}	K – 50µm	Température de l’électrode conductimétrique supérieure

Tableau 2 : Dénominations, types et emplacements de l’ensemble des thermocouples intégrés au banc expérimental.

II.2.2 Instrumentation conductimétrique

Les capteurs de conductimétrie employés ont été développés par Labat [94] et largement utilisés par Sébastien Guéroult dans sa thèse [77]. Dans cette étude, leur principe de base est repris, tout en s’adaptant à la particularité de cette configuration : un milieu insaturé dont la température varie au cours du temps. Comme on peut le voir sur la Figure IV- 21, la préforme fibreuse est entourée par deux électrodes en laiton d’une épaisseur de 50 µm. Afin d’éviter les effets de pile, une tension sinusoïdale est appliquée entre ces électrodes, la conductance électrique du milieu présent entre celles-ci est mesurée.

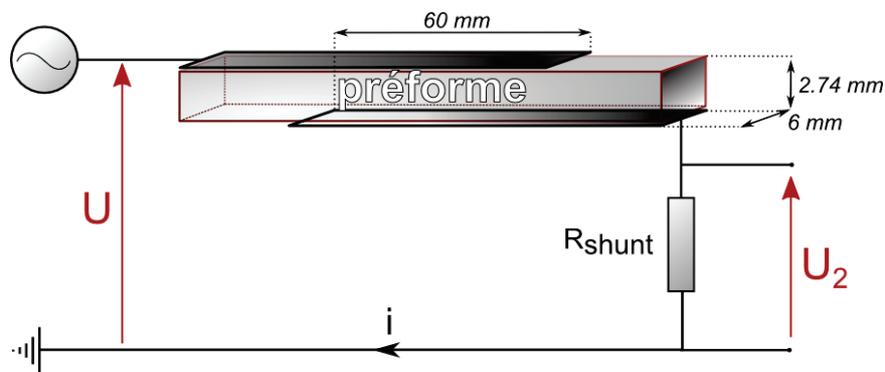


Figure IV- 21 : Schéma de principe de fonctionnement du capteur conductimétrique.

Le choix de la largeur des électrodes (6 mm) a été étudié par Guéroult et représente un compromis entre une largeur suffisante pour contenir les bulles les plus grandes ainsi que pour prendre en compte les irrégularités de la préforme, et une mesure de saturation dans une section la plus faible possible.

Comme on le voit sur le schéma, les électrodes ne sont pas rigoureusement en vis-à-vis, mais légèrement décalées. De cette manière, la mesure ne se fait que dans la zone centrale du moule, là où les écoulements préférentiels ne sont pas susceptibles de se produire.

Pour cette configuration, le calcul de la capacité équivalente du condensateur formé par les armatures métalliques et le milieu poreux montre que les effets diélectriques peuvent raisonnablement être

négligés. On se trouve donc dans un cas purement résistif. Le montage électrique est un pont diviseur de tension constitué de deux résistances en série, la résistance du moule et une résistance shunt. En écrivant la loi d'Ohm dans ce diviseur de tension, on a

$$U = (R_{moule} + R_{shunt}) \cdot i \text{ donc } i = \frac{U}{R_{moule} + R_{shunt}} \quad \text{Eq. (4.21)}$$

$$\text{Or } U_2 = R_{shunt} \cdot i \quad \text{Eq. (4.22)}$$

Donc la tension mesurée U_2 est reliée à la résistance du milieu par la relation suivante :

$$U_2 = U \frac{R_{shunt}}{R_{moule} + R_{shunt}} \quad \text{Eq. (4.23)}$$

A partir de l'équation (4.21), la valeur de la résistance shunt doit être choisie avec soin.

- Si $R_{shunt} \gg R_{moule}$, alors $U_2 \sim U$, aucune variation de R_{moule} n'est détectée
- Si $R_{shunt} \ll R_{moule}$, alors $U_2 \sim \frac{U R_{shunt}}{R_{moule}}$, alors la sensibilité à R_{moule} est non nulle.

Comme on le voit, on a intérêt à choisir une résistance shunt dont la valeur est très inférieure à celle de l'entrefer des électrodes. Toutefois, il existe encore un compromis à trouver puisque plus la résistance choisie est faible, plus la tension mesurée l'est aussi. Il faut donc tenir compte du calibre minimal de l'acquisition utilisée. Les paramètres relatifs au capteur sont rassemblés dans le tableau suivant.

Dimensions électrodes	Tension U	Résistance shunt	Fréquence
60 mm x 6 mm x 0.05 mm	1V	100 Ω	100Hz

Tableau 3 : Paramètres du capteur de conductimétrie

Enfin, un soin particulier est porté à l'isolation électrique entre les électrodes et leurs supports respectifs. En effet, la forte tension appliquée entre celles-ci peut fausser complètement les thermocouples des trois capteurs de flux intégrés dans la plaque d'acier. Pour ce faire, un film isolant est ajouté entre l'électrode inférieure et son support métallique.

La conductivité électrique étant très dépendante de la température, il est également nécessaire d'instrumenter les électrodes conductimétriques avec des micro-thermocouples. Ainsi, des thermocouples K de 50 μm de diamètre (notés T_{elec_bas} et T_{elec_haut}) sont ajustés et collés au centre de chaque électrode.



Figure IV- 22 : Positionnement et instrumentation de l'électrode conductimétrique inférieure

II.2.3 Capteurs de pression

Enfin, deux capteurs de pression sont implantés dans le banc expérimental, au premier et au deuxième tiers de la préforme. Ces capteurs de type EPX-N02-7B sont capables de mesurer des pressions allant jusqu'à $0,7 \text{ MPa}$ avec une bonne précision.

II.3 Système d'acquisition

Le système d'acquisition est composé de deux acquisitions hautes fréquences qui sont synchronisées pendant les expérimentations, une DL750 de la société Yokogawa[®] et une DAS 1400 de Sefram[®]. Les enregistrements sont réalisés à une fréquence d'acquisition de 20 Hz , au calibre minimal pour les thermocouples, à savoir $100 \mu\text{V/div}$. L'ensemble des soudures froides des thermocouples K est connectée à un boîtier de référence dont la température est connue précisément grâce à une sonde de platine Pt100.

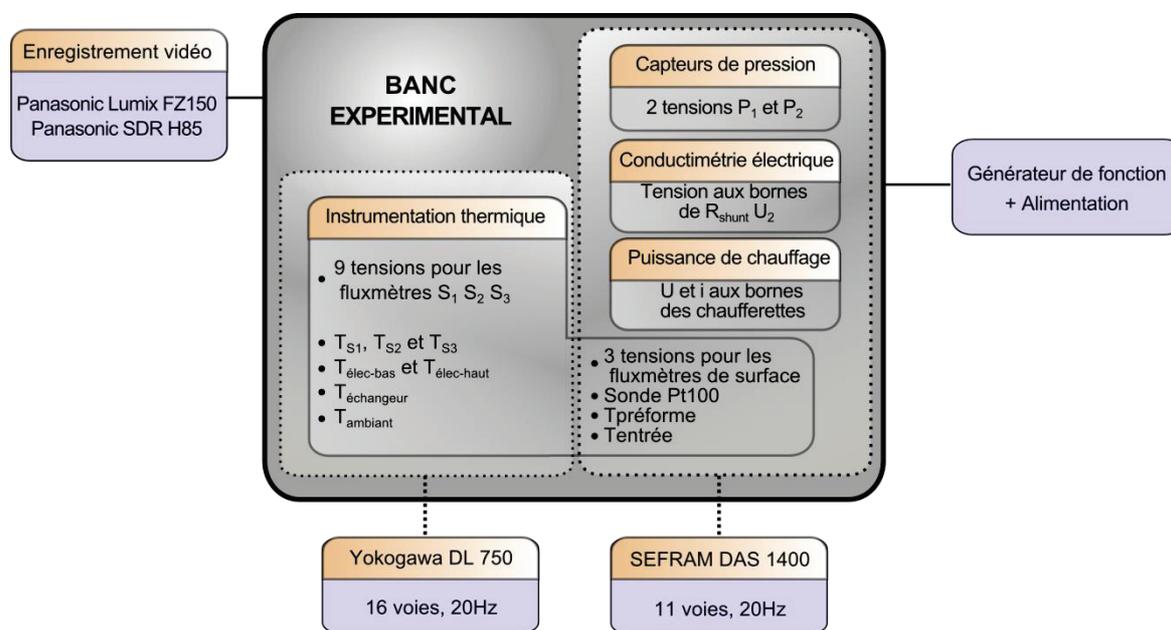


Figure IV- 23 : Organigramme des systèmes d'acquisition associés au banc expérimental

Une alimentation stabilisée de 80 V fournit la puissance aux chaufferettes électriques, tandis qu'un générateur de fonction impose une tension sinusoïdale de 1 V d'amplitude sur les électrodes du capteur de conductimétrie. Enfin, deux caméras HD permettent l'observation des écoulements. La première filme l'avancée globale du front tandis que la seconde permet de faire des gros plans sur la préforme.

II.4 Renfort et fluide modèle utilisés

II.4.1 Fluide modèle

Pour toutes les injections réalisées dans cette étude, un fluide modèle est utilisé. Ce fluide est choisi de manière à ce que ses propriétés se rapprochent au plus près de celles d'une résine typiquement utilisée en RTM, en termes de viscosité, de tension de surface, d'angle de contact et de masse volumique. La sélection de ce fluide a été faite dans la thèse de Ludovic Labat, et par la suite Sébastien Guéroult l'a également utilisé dans ses travaux. Il s'agit d'un mélange de :

- 87% de glycérol pur
- 12,6% d'eau distillée
- 0,3% de tensioactif SDS, afin d'abaisser la tension de surface pour rendre le mélange plus mouillant
- 0,1% de chlorure de potassium KCl, introduit afin que la conductivité électrique soit non nulle.

II.4.2 Renfort fibreux

La préforme utilisée est un renfort de fibre de verre unidirectionnel (Figure IV- 24), ou plus précisément ce que l'on appelle communément un « quasi-UD », dans le sens où des fils de polyester garantissant le maintien de la préforme sont tissés perpendiculairement aux fibres. Ce renfort est constitué de 2K filaments par mèche.



Figure IV- 24 : Prise de vue d'un pli de renfort de verre et gros plan sur une mèche le constituant.

Renfort fibreux	Masse surfacique ($g.m^{-2}$)	646
	Masse volumique ($kg.m^{-3}$)	2600
	Taux volumique de fibres (%)	49
	Nombre de plis	5
	Nombre de filaments par mèche	~2000
	Diamètre moyen des fibres (μm)	7,8
	Demi-grand axe (mm)	1,86
	Demi-petit axe (mm)	0,29
Liquide modèle	Viscosité à 20°C ($mPa.s$)	132
	Tension de surface ($mN.m^{-1}$)	46,96
	Angle de contact statique ($^{\circ}$)	45
	Masse volumique ($kg.m^{-3}$)	1219

Tableau 4 : Propriétés physiques du renfort de verre et du liquide modèle.

II.5 Procédures d'étalonnage des capteurs

L'objectif de cette étude est de quantifier finement la saturation d'un renfort fibreux par un fluide par le biais de mesures de flux thermiques transverses. La réussite de cette entreprise dépend essentiellement de deux facteurs. D'une part, elle requiert la connaissance précise de la conductivité thermique du

matériau en fonction de la saturation, ce que nous avons vu dans le chapitre précédent. Mais elle exige également une métrologie thermique précise, qui s'ajoute au fait que la mesure de flux de chaleur est généralement assez délicate. Par conséquent, un protocole d'étalonnage des fluxmètres thermiques a été défini, qui fait l'objet de la partie suivante. De la même manière, une attention particulière a été portée sur l'étalonnage du capteur conductimétrique, que nous verrons dans une seconde partie.

II.5.1 Etalonnage des fluxmètres thermiques

II.5.1.a Conception d'un banc de caractérisation des fluxmètres

Afin de pouvoir comparer les performances des différents fluxmètres à notre disposition, un banc de test *ad hoc* a été conçu. Il est composé de plusieurs parties dont une plaque d'acier massive de dimension $297 \times 597 \times 77 \text{ mm}$ dans laquelle les capteurs à tester sont montés. Les dimensions de cette plaque ont été choisies de manière à pouvoir tester 3 capteurs simultanément, sans qu'ils puissent interagir ensemble et sans que les effets de bords ne puissent altérer la mesure. De plus, cette plaque est faite de la même nuance d'acier que les capteurs eux-mêmes (40CMD8), et dispose d'un système d'inserts pouvant s'adapter à n'importe quelle géométrie de fluxmètre.

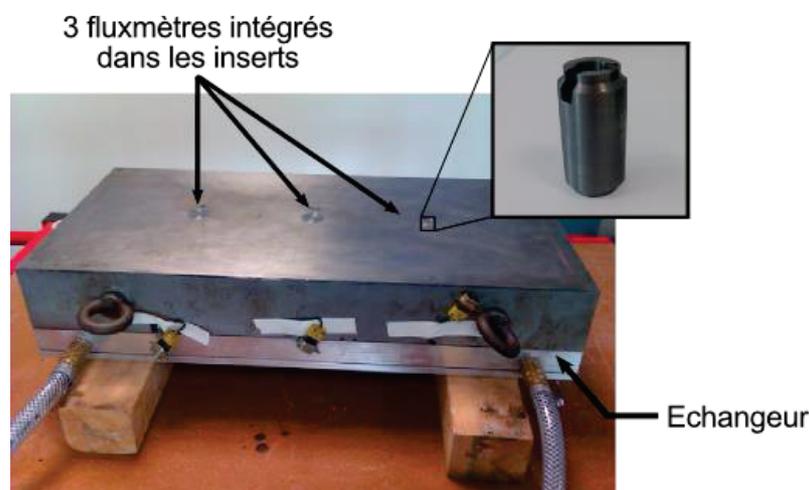


Figure IV- 25 : Vue de la plaque inférieure, de l'échangeur associé, ainsi que du système d'inserts

La sollicitation thermique est assurée, comme dans le banc expérimental de saturation, par un flux surfacique uniforme dissipé par une chaufferette électrique de la société Minco[®]. L'ensemble du montage est constitué de plusieurs couches de bas en haut (voir Figure IV- 26), à commencer par :

- Un échangeur de chaleur à circulation d'eau en aluminium, permettant d'absorber la chaleur générée par les résistances électriques.
- Le banc proprement dit, dans lequel les capteurs à tester auront été intégrés.
- Une couche de graisse thermoconductrice afin d'assurer un contact parfait
- Une fine tôle d'aluminium (ép. 1 mm) sur laquelle sont collés les éléments chauffants. Elle permet d'homogénéiser la température à sa surface en raison de sa grande diffusivité.
- Les chaufferettes électriques
- Une couche d'un matériau commercial appelé Thermagap, constitué d'une pâte malléable limitant la création de résistances thermiques de contact entre deux solides en contact.
- Une plaque en composite fibre de verre-polyester isolante, afin de contraindre la quasi-intégralité du flux à passer dans les capteurs, c'est-à-dire vers le bas.
- Une plaque de maintien en acier pour pouvoir appliquer une pression homogène par serrage.

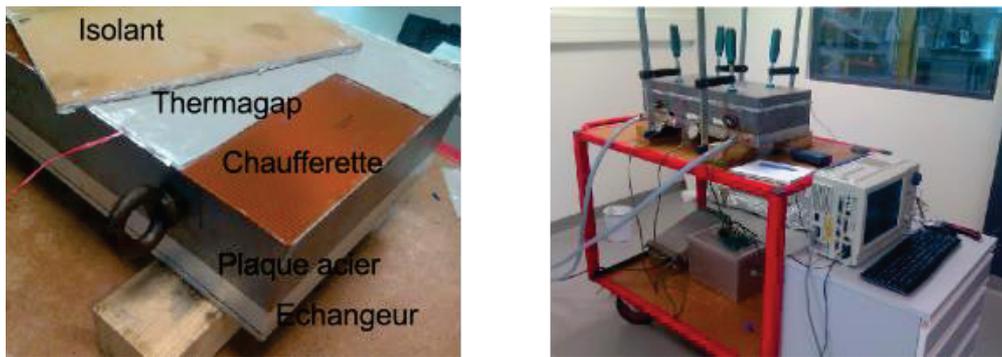


Figure IV- 26 : Détail des différentes couches du moule (à gauche), et vue globale du dispositif (à droite)

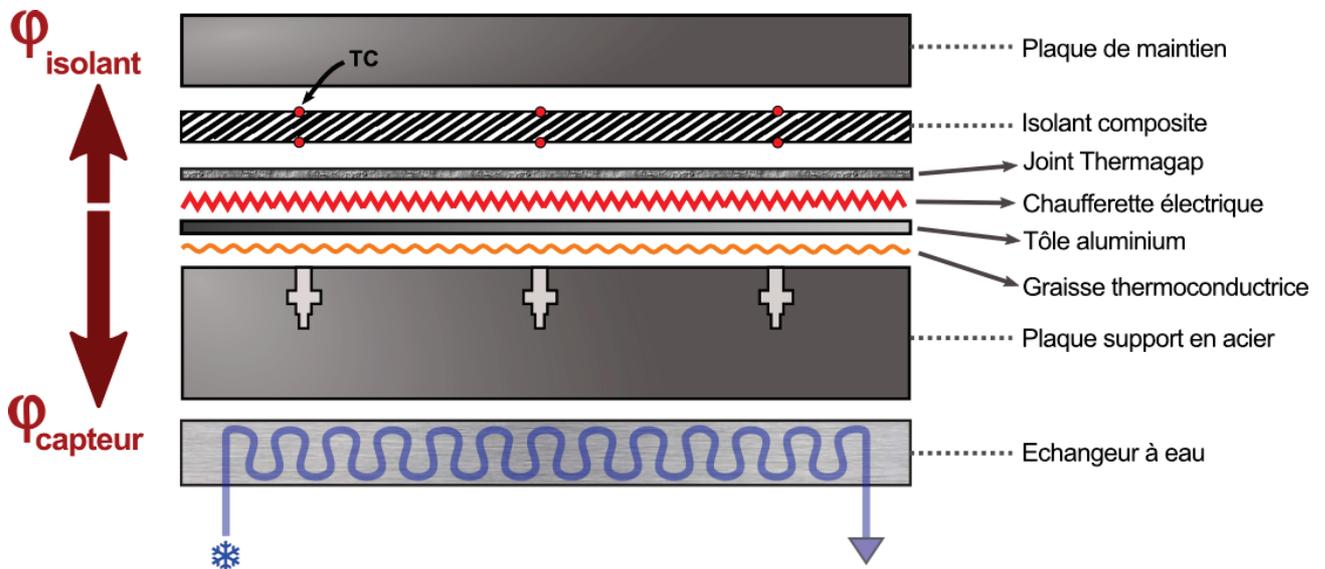


Figure IV- 27 : Eclaté du banc d'étalonnage représenté avec la métrologie thermique

Le principe de la mesure est simple : connaissant précisément la puissance dissipée dans les éléments chauffants par effet Joule, et le moule étant isolé sur ses faces latérales, l'égalité suivante doit être vérifiée à tout instant.

$$\varphi_{chauffeurette} = \varphi_{isolant} + \varphi_{capteur} \quad \text{Eq. (4.24)}$$

La détermination de $\varphi_{isolant}$, c'est-à-dire le flux traversant la plaque d'isolant vers le haut, repose sur une résolution implicite du champ de température dans ce dernier par la méthode des différences finies en considérant comme conditions aux frontières les évolutions temporelles de températures renseignées par des thermocouples placés de part et d'autre de la plaque. L'équation de la chaleur est discrétisée de la façon suivante :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad 0 \leq x \leq e \quad \text{Eq. (4.25)}$$

$$\forall k \in \llbracket 0, N - 1 \rrbracket \text{ et } \forall i \in \llbracket 1, N \rrbracket, \quad T_{i-1}^{k+1} - \left(2 + \frac{\Delta x^2}{a\Delta t} \right) \cdot T_i^{k+1} + T_{i+1}^{k+1} = -\frac{\Delta x^2}{a\Delta t} T_i^k \quad \text{Eq. (4.26)}$$

où $a = \frac{\lambda}{\rho c_p}$ est la diffusivité thermique, T_0^{k+1} est la condition limite de température au contact avec la chaufferette, et T_{N+1}^{k+1} est la condition limite de température à l'extrémité de l'isolant.

La valeur de φ_{capteur} est quant à elle fournie par le capteur à étudier. Cependant, l'équation (4.22) n'est pas vérifiée aux tout premiers instants en raison de l'accumulation de la chaleur dans la fine tôle d'aluminium sur laquelle la chaufferette est collée, ainsi que celle dans la couche de joint Thermagap. Même si les masses de ces matériaux sont faibles en raison de leur relative faible épaisseur, il est nécessaire de prendre en compte l'accumulation de la chaleur dans ceux-ci pour bien décrire les premiers instants de la manipulation. L'équation modifiée devient ainsi :

$$\varphi_{\text{chaufferette}} = \varphi_{\text{isolant}} + \varphi_{\text{capteur}} + (\rho c_p e)_{\text{alu}} \frac{\partial T_{\text{surface}}}{\partial t} + (\rho c_p e)_{\text{thermagap}} \frac{\partial T_{\text{isolant_inf}}}{\partial t} \quad \text{Eq. (4.27)}$$

En raison de la forte diffusivité thermique de l'aluminium et de sa faible épaisseur, on ne prend pas en compte les gradients de température, et faisons l'hypothèse que la valeur de sa température est égale à la température de surface de la plaque d'acier calculée par l'algorithme de Beck. De la même manière, la température du Thermagap est supposée égale à la température fournie par le thermocouple situé sur la face inférieure de l'isolant ($T_{\text{isolant_inf}}$). Les propriétés thermophysiques de l'ensemble des matériaux constituant le banc sont rassemblées dans le tableau suivant.

	Acier 40CMD8	Isolant fibre de verre-résine	Chaufferette	Thermagap	Tôle aluminium
ρ (kg.m^{-3})	7850	2700	1400	2200	2700
λ ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	36	160	0,28	1,5	160
C_p ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	475	900	1730	1000	900
Epaisseur (mm)	77	8,5	0,3	1,5	1,5

Tableau 5 : Propriétés thermophysiques des matériaux constituant le banc

On impose des créneaux successifs de chauffage à différentes densités de puissance, afin de vérifier que les capteurs sont étalonnés pour une large gamme de flux de chaleur, en montée et en descente. La Figure IV- 28 représente l'évolution du flux absorbé par la tôle en aluminium en fonction du temps à comparer avec le flux total dissipé par effet Joule. Lorsque les résistances électriques sont mises sous tension, l'aluminium accumule de la chaleur qui est libérée à l'extinction de l'alimentation électrique. Les courbes sont en parfaite concordance avec les créneaux de flux imposés. De plus, on constate que cette correction n'est pas négligeable puisqu'elle représente jusqu'à 13 % d'erreur dans les premiers instants. Il en est de même pour l'accumulation dans le Thermagap, qui n'est pas présentée ici.

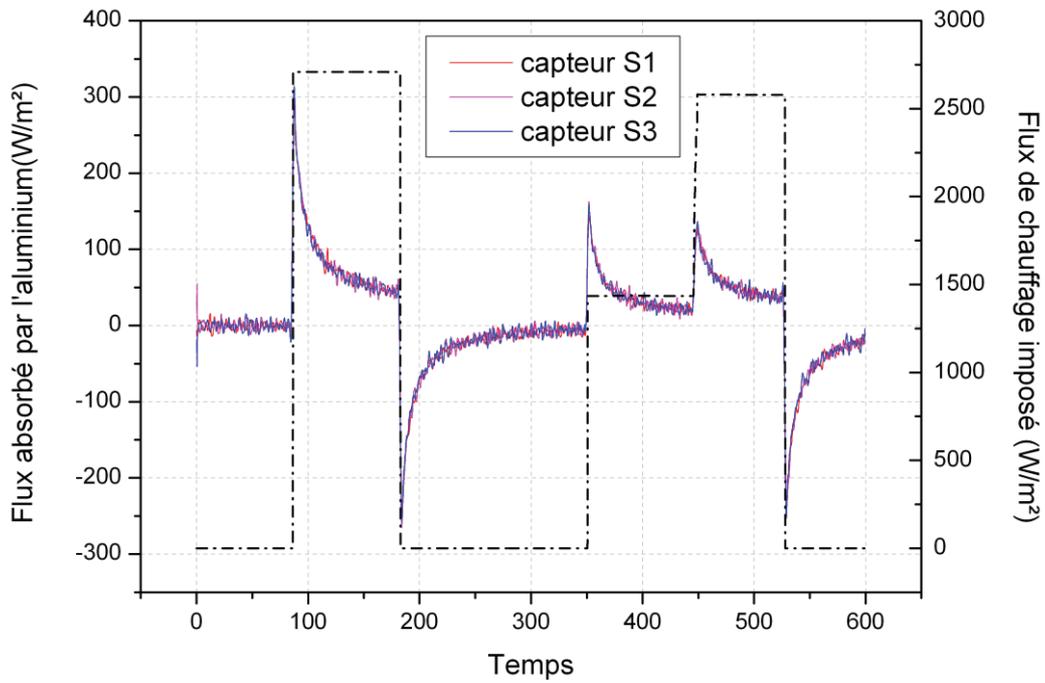


Figure IV- 28 : Importance du flux absorbé par la tôle d'aluminium au niveau de chaque capteur S_1 , S_2 et S_3 .

La Figure IV- 29 représente la comparaison entre les réponses données par les différents capteurs S_1 , S_2 et S_3 , et la valeur théorique de flux qu'ils devraient indiquer, si leur précision était parfaite. On note que les réponses des capteurs S_1 et S_3 diffèrent considérablement de la valeur théorique, avec des réponses respectivement 7,8 % supérieure et 10,2 % inférieure. En revanche, leur temps de réponse est satisfaisant, et on constate que l'allure générale des courbes semble juste avoir subi une homothétie. L'utilisation de ces capteurs en l'état est impossible dans le cadre de notre étude, c'est pourquoi un protocole d'étalonnage est indispensable.

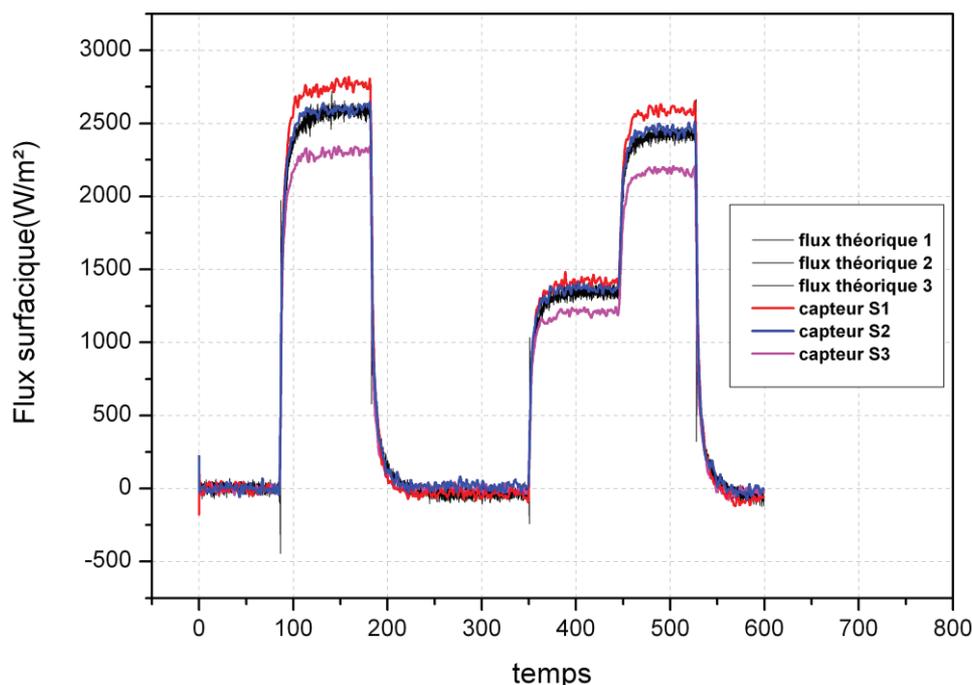


Figure IV- 29 : Comparaison entre les flux donnés par les trois capteurs et leurs valeurs théoriques respectives.

II.5.1.b Procédure d'étalonnage des fluxmètres

La raison pour laquelle ces capteurs sont imprécis est méconnue. Plusieurs explications sont toutefois possibles :

- La qualité du montage des capteurs dans le banc pourrait également avoir une influence. Pour quelques dizaines de micromètres, le capteur peut ne pas être parfaitement affleurant à la surface, dépasser légèrement ou bien être un peu en retrait.
- A la conception, la position de chaque thermocouple au sein de chaque capteur est mesurée précisément à l'aide d'une loupe binoculaire. L'imprécision due à cette manipulation peut également être mise en cause.

De plus, s'il existait une incertitude sur la valeur de la conductivité, de la masse volumique ou de la chaleur spécifique de l'acier qui sont autant de paramètres d'entrée dans l'algorithme de Beck utilisé pour convertir les données de températures en flux de chaleur, les capteurs présenteraient tous la même réponse décalée, ce qui n'est pas le cas ici.

Des analyses ont montré que les paramètres thermophysiques étaient trop peu sensibles sur le flux calculé pour qu'ils puissent expliquer un tel écart. Seules des valeurs déraisonnables de conductivité de l'acier permettaient de compenser celui-ci. De plus, la première hypothèse est également éliminée puisque des joints métalliques d'épaisseurs contrôlées ont été insérés pour parfaire le montage de chaque capteur. Par conséquent, (et si la caractérisation des capteurs a été réalisée avec précaution), le seul paramètre influent sur lequel nous avons un moyen d'action est la position des thermocouples

composant le capteur. La procédure d'étalonnage décrite ci-après se fonde donc sur le calcul de nouvelles positions de thermocouples.

Dans ce protocole de calcul, on suppose tout d'abord que la position du troisième thermocouple TC3 a été déterminée sans commettre d'erreur et qu'elle est donc exacte. Une simulation numérique simple de conduction thermique est réalisée en 1D à l'aide du logiciel Comsol Multiphysics. L'élément simulé est une barre rectiligne ayant les propriétés de l'acier du capteur et une longueur égale à la position du troisième thermocouple (voir Figure IV- 30). Les conditions aux limites appliquées sont :

-sur la surface supérieure, le flux théorique que devrait mesurer le capteur, calculé selon l'équation (4.25).

-sur la surface inférieure, la température expérimentale enregistrée par le thermocouple 3.

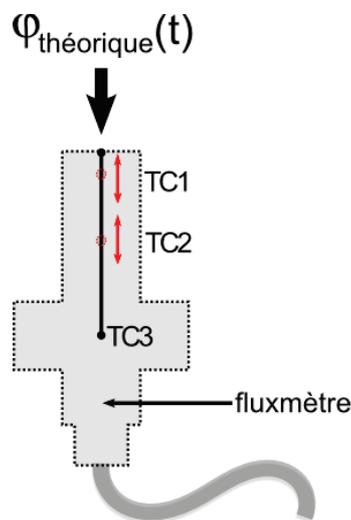


Figure IV- 30 : Protocole d'étalonnage des capteurs par variation des positions des thermocouples.

On fait ensuite varier les positions de TC1 et TC2 afin de retrouver les évolutions de température expérimentales. Un critère de minimisation selon la méthode des moindres carrés est ensuite défini et satisfait à l'équation

$$J(z_{TC1}, z_{TC2}) = \sum_{i=1}^2 \sum_{t=0}^{t_f} (T_{i,exp}(t) - T_i(t)) \quad \text{Eq. (4.28)}$$

Avec z_{TC} les positions des thermocouples considérés, et T_{exp} et T les températures expérimentales et numériques aux points considérés.

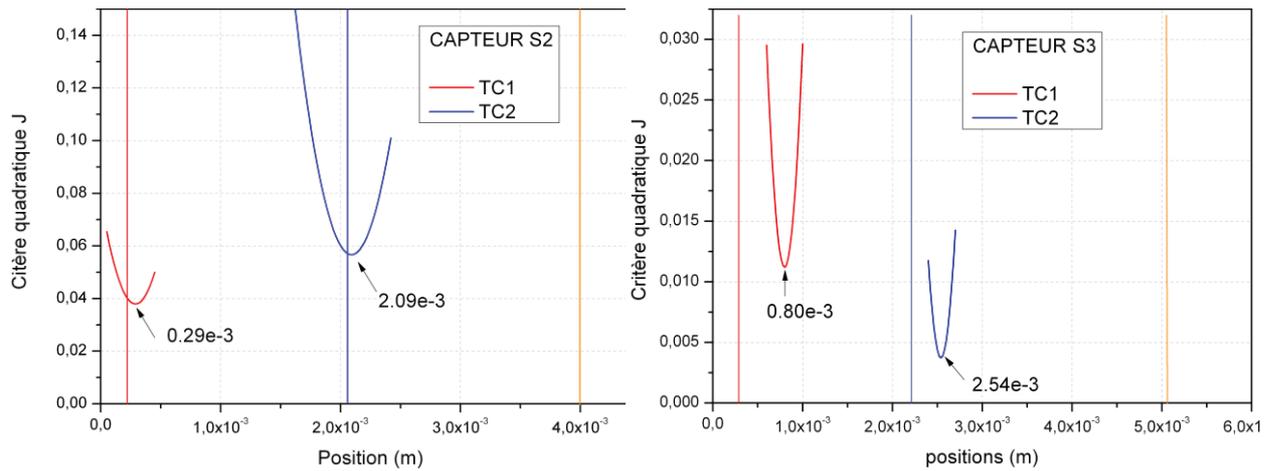


Figure IV- 31 : Critère de minimisation de l'écart de température en fonction de la position des thermocouples TC1 et TC2 pour les capteurs S2 (à gauche) et S3 (à droite). Les positions originales des thermocouples sont symbolisées par une barre verticale.

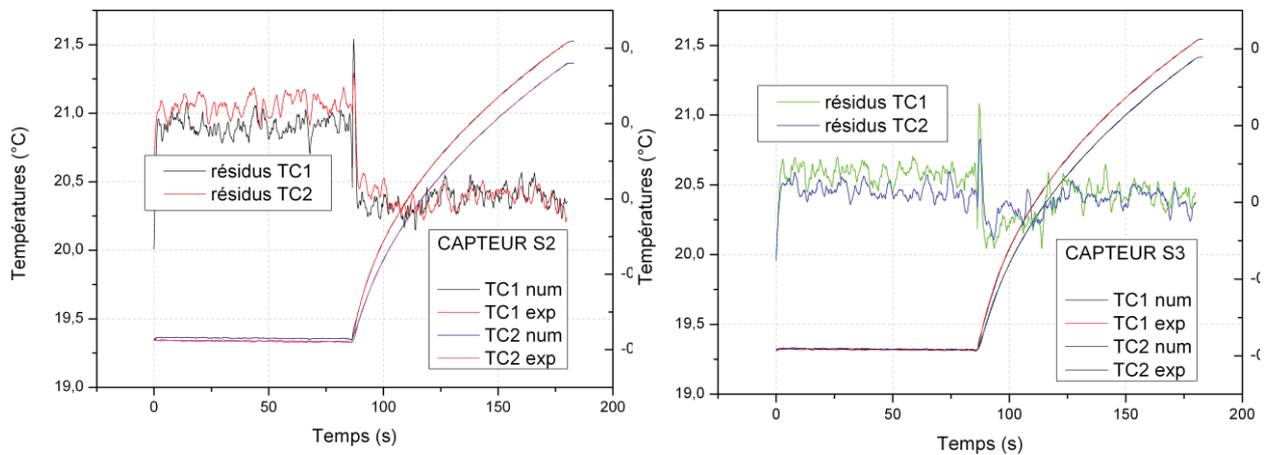


Figure IV- 32 : Aperçu des courbes expérimentales et numériques de TC1 et TC2 pour les deux capteurs, ainsi que les résidus associés.

La Figure IV- 31 nous renseigne sur l'évolution des positions des thermocouples après l'étalonnage. On constate que pour le capteur S2, les corrections sont mineures, car elles correspondent à un déplacement de quelques microns. Ce genre d'erreur peut facilement être expliqué par l'imprécision de la mesure réalisée au microscope optique. En revanche, pour les autres capteurs (S1 et S3), les corrections nécessitent de considérer des nouvelles positions éloignées des anciennes de plusieurs dixièmes de millimètres. Une telle erreur est improbable avec une observation optique, c'est la raison pour laquelle nous posons une autre hypothèse, qui pourrait expliquer de tels écarts. Les capteurs étant relativement anciens, il est possible que la gaine isolante des fils de thermocouples se soit dégradée, provoquant ainsi un contact électrique entre les fils et le corps du capteur à un endroit situé plus en profondeur que la soudure. Néanmoins, nous n'avons pas mené d'investigations afin de valider cette hypothèse. Les positions finales déterminées pour chaque capteur sont visibles dans le Tableau 6.

Positions (mm)	S1 (SWIM6)	S2 (SWIM4)	S3 (SWIM3)
TC1	0,06*	0,29*	0,80*
TC2	1,94*	2,09*	2,54*
TC3	4,136	3,997	5,057

Tableau 6 : Positions des thermocouples dans chaque capteur après l'étalonnage (* : positions recalculées)

La figure suivante met en évidence l'effet de l'étalonnage par modifications des positions des thermocouples. Comme on peut le voir sur le graphe de droite, les réponses de l'ensemble des capteurs se rapprochent de la courbe du flux théorique à moins de 2 % de précision. Il est à noter que ces tests ont aussi été effectués avec des créneaux plus ou moins longs, et des niveaux de flux thermique variés. Dans tous les cas les résultats se sont montrés satisfaisants, c'est la raison pour laquelle les nouvelles positions de thermocouples calculées seront conservées dans la suite de l'étude.

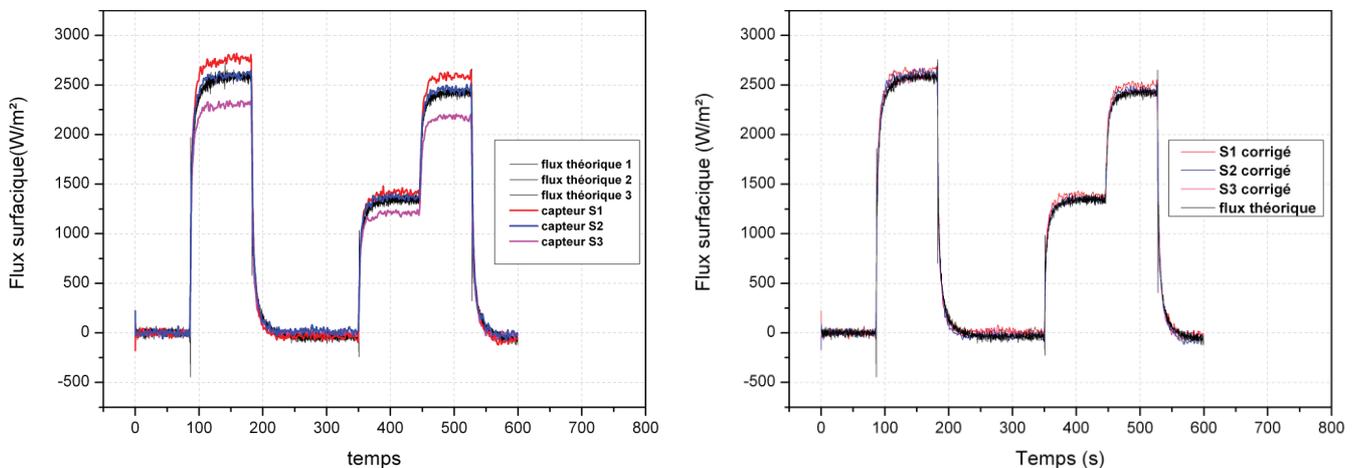


Figure IV- 33 : Visualisation des flux des capteurs S1, S2 et S3 avant et après étalonnage.

II.5.2 Etalonnage du capteur de conductimétrie

Cette partie présente les différentes démarches ayant permis de mettre en place un protocole d'étalonnage des capteurs conductimétriques. Ce dernier a deux objectifs principaux :

- décrire précisément l'évolution de la conductivité électrique d'un milieu insaturé en fonction de sa saturation
- prendre compte des aspects thermiques pour pouvoir apporter une correction à la mesure *in fine*.

II.5.2.a Evolution de la conductivité électrique avec la saturation

- Approche expérimentale

Afin de mesurer l'évolution de la conductivité du liquide modèle en fonction de la saturation, une cellule test de conductimétrie a été réalisée (voir Figure IV- 34). Cette cellule est une petite cuve en PMMA dans laquelle deux électrodes en laiton sont placées en vis-à-vis. Les conditions opératoires sont strictement identiques à celles utilisées pendant les injections. La cellule est initialement remplie

avec le fluide modèle, ce qui donne une valeur de la conductance du milieu à saturation totale ($S=1$). Par la suite, une masse précise de billes de verre simulant les bulles d'air est introduite dans la cuve et une mesure est réalisée. La conductivité électrique du verre étant de $10^{-17} S/m$, on peut logiquement considérer les sphères de verre comme parfaitement isolantes devant le liquide (qui est elle de l'ordre de $10^{-6} S/m$) [100]. Pour être représentatif des différents vides que l'on peut rencontrer dans les procédés LCM, deux diamètres de billes sont sélectionnés, représentant les micro-vides (billes de diamètre compris entre 100 et $150 \mu m$), et les macro-vides (billes de diamètre $\sim 1mm$), puisque rien ne dit *a priori* que la conductivité est indépendante du diamètre des particules. Un schéma de la cellule test est présenté sur la figure suivante.

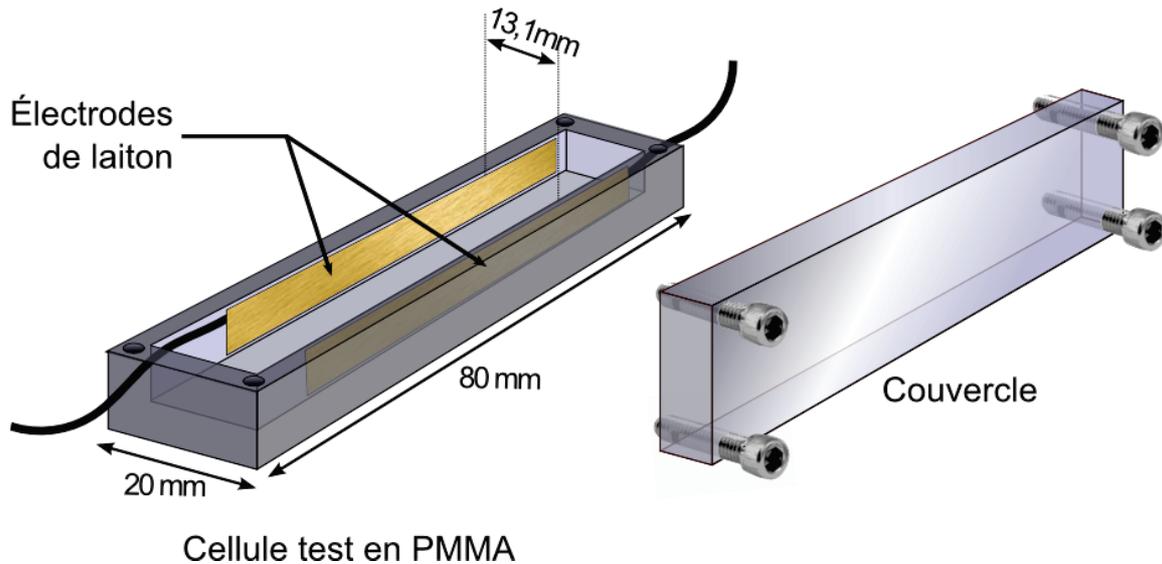


Figure IV- 34 : Cellule test de conductimétrie électrique

- Approche numérique

Cette approche expérimentale a été couplée avec une simulation simple réalisée sous Comsol Multiphysics. Un code Matlab permet tout d'abord de distribuer des disques de manière aléatoire dans une matrice de liquide pour créer la géométrie du domaine. Puis, en imposant une différence de potentiel sur ce domaine, on résout une équation de conservation du courant électrique (voir Eq. 4.29).

$$J = \sigma E \text{ et } E = -\nabla V \quad \text{Eq. (4.29)}$$

où J est la densité de courant (A/m^2) et E le champ électrique (V/m).

On déduit enfin la conductivité électrique globale du milieu en exploitant l'intégrale de la densité de courant à travers la frontière du domaine. Afin que le volume choisi soit suffisamment représentatif, on trace l'évolution de l'erreur relative faite sur la conductivité électrique en fonction du nombre de fibres inclus dans le domaine, à taux de fibre constant. Comme on le voit sur la figure suivante, on estime qu'une bonne précision est atteinte à partir de 200 disques (ou fibres).

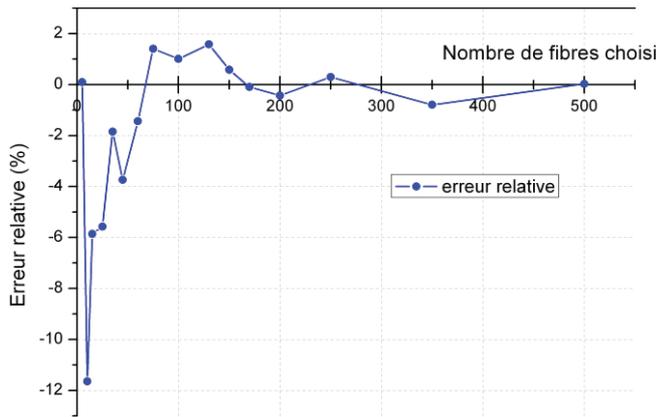


Figure IV- 35 : Evolution de l'erreur relative en fonction du nombre de fibres choisi

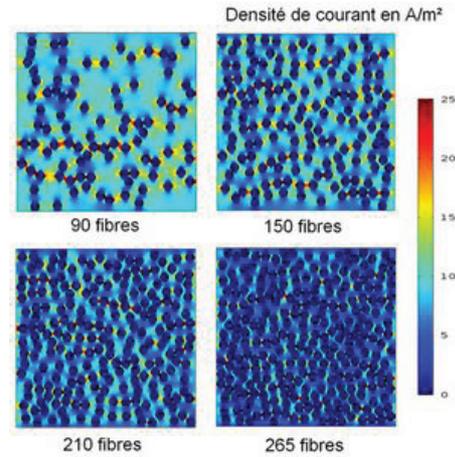


Figure IV- 36 : Densité de courant pour des domaines aléatoires composés de 90 à 265 fibres.

- Modèle de Maxwell-Wagner

Il existe une grande quantité de modèles décrivant la conductivité électrique de milieux dispersés, mais le modèle le plus simple et le plus adapté à notre cas est celui de Maxwell et Wagner. Ce modèle décrit l'évolution de la conductivité électrique d'une suspension de particules sphériques dans un liquide homogène. La conductivité électrique effective de la suspension est donnée par

$$\sigma = \sigma_0 \frac{1 + 2\Omega\Phi}{1 - \Omega\Phi} \quad \text{Eq. (4.30)}$$

Où Ω est défini par

$$\Omega = \frac{\sigma_p - \sigma_0}{\sigma_p + 2\sigma_0} \quad \text{Eq. (4.31)}$$

Φ est la fraction volumique de particules, σ_0 la conductivité du liquide et σ_p la conductivité des particules. Dans le cas particulier de particules isolantes la formule devient :

$$\sigma = \sigma_0 \left[\frac{2 - 2\Phi}{2 + \Phi} \right] \quad \text{Eq. (4.32)}$$

- Comparaison des résultats

La Figure IV- 37 rassemble les résultats obtenus au moyen de la cellule expérimentale, avec les micro et macro-billes, ceux obtenus par résolution d'une équation de conservation du courant électrique dans un domaine dispersé aléatoirement, et enfin le modèle de Maxwell-Wagner. On remarque que quelque soit la méthode, il n'est pas possible de décrire les fractions volumiques d'inclusions supérieures à 55 %, qui est la compacité théorique maximale pour un empilement aléatoire de sphères.

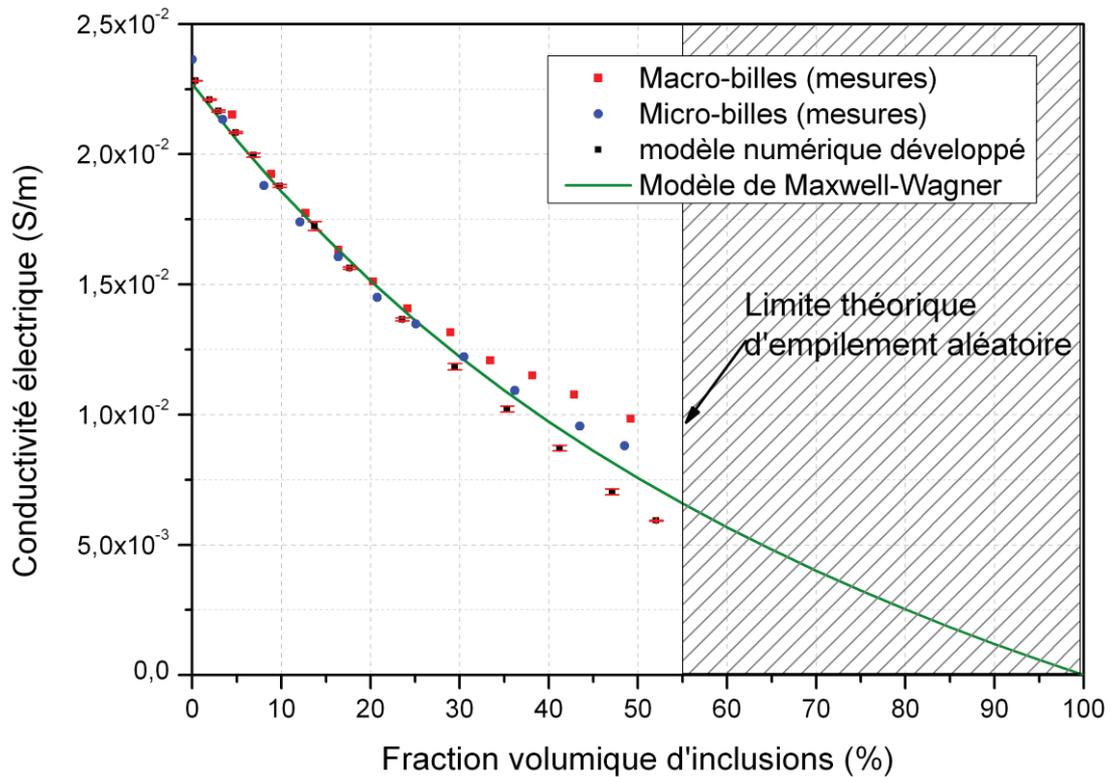


Figure IV- 37 : Comparaison des résultats expérimentaux (cellule test), des résultats numériques (dispersion de disques aléatoire), et du modèle de Maxwell-Wagner.

Aux erreurs de mesure près, l'évolution de la conductivité du liquide avec les micro-billes suit globalement le modèle théorique de Maxwell-Wagner. Cependant, on constate une différence notable avec la courbe des macro-billes, qui s'accroît pour les forts taux de particules. Cet effet semble être un artefact de mesure lié à la dimension de la cellule test, qui s'avère trop petite devant le diamètre des macro-billes. En effet, le problème rencontré est un effet de paroi car celle-ci influe sur l'arrangement des sphères à son voisinage. Puisque les sphères ne peuvent pas pénétrer dans la paroi, au niveau de celle-ci, la porosité est $\varepsilon = 1,0$. Par ailleurs, du fait de l'alignement des sphères à la paroi il y a une surconcentration de centres de sphères à une distance d'un rayon de sphère, à cette distance la porosité est très faible et proche de $\varepsilon = 0,2$. Ensuite, la porosité suit plusieurs sinusoïdes avant d'atteindre la porosité globale quand les bords sont suffisamment éloignés. La figure suivante (Figure IV- 38) illustre le phénomène d'effet de paroi en représentant le profil de porosité au sein de la cellule test.

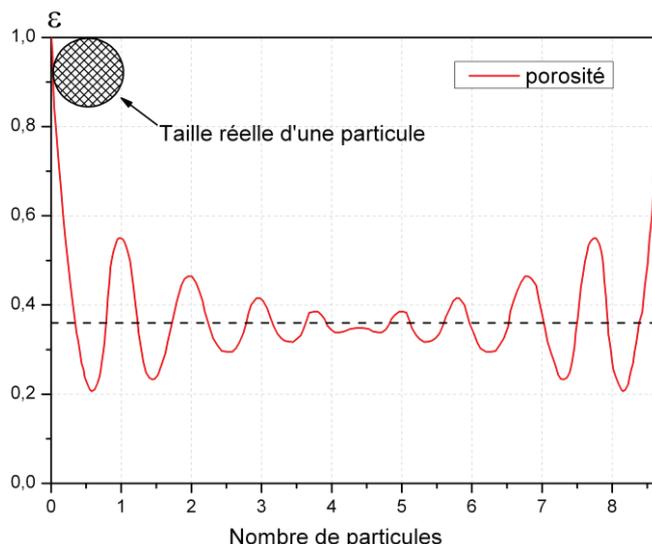


Figure IV- 38 : Profil de porosité typique en proche paroi. Ici la taille des macro-billes est telle que l'espace inter-électrodes ne représente que 8 particules.

On considère que cet effet de paroi se fait sentir jusqu'à 4 ou 5 diamètres de particules, il est donc d'autant plus important que le diamètre des billes est grand par rapport aux dimensions de la cellule.

En résumé, ces approches ont permis de valider le modèle de Maxwell-Wagner, qui a le mérite de décrire la conductivité électrique pour tous les taux de particules de verre possibles, donc pour toutes les saturations possibles. La conductivité électrique du renfort saturé est lue pour un taux d'inclusions égal au taux volumique de fibres, et la portion de courbe située entre ce point et le point de conductivité nulle décrit l'ajout de bulles d'air dans le mélange, donc la saturation. Dans la suite, on fera donc appel à ce modèle pour la conversion des signaux de tension en saturation.

II.5.2.b Evolution de la conductivité électrique avec la température

La conductivité électrique de l'électrolyte est fortement thermo-dépendante. Il est donc indispensable de prendre en compte cette évolution pour pouvoir corriger les effets de la température sur les signaux en tension.

Le banc expérimental décrit dans les paragraphes précédents (II.5.1) est utilisé dans une configuration particulière : la cavité moulante est remplie de liquide modèle en l'absence de fibres de verre. L'écoulement est ensuite stoppé et on patiente jusqu'à atteindre un état isotherme. Par la suite, on impose un échelon de flux en allumant les chaufferettes. Les températures de chaque électrode et la tension du capteur conductimétrique sont alors enregistrées. Elles sont représentées sur la figure suivante.

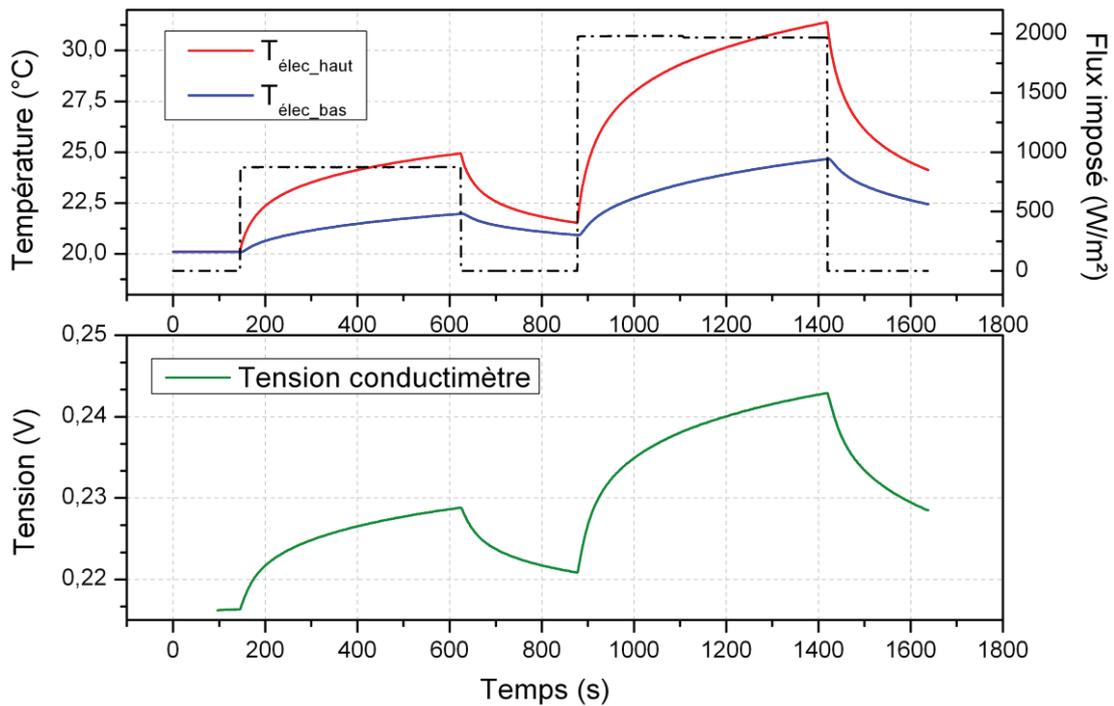


Figure IV- 39 : Evolution de la température des électrodes conductimétriques et de la tension mesurée aux bornes de U_{shunt} au cours de deux échelons de flux.

La température moyenne du liquide entre les électrodes est supposée égale à la moyenne des températures de chaque électrode. L'évolution de la tension mesurée aux bornes de la résistance shunt en fonction de la température moyenne du fluide en montée comme en descente est tracée sur la Figure IV- 40. La conductivité électrique est proche d'une variation linéaire avec la température, sans création d'hystérésis (montée et descente confondues). On fait donc l'hypothèse que l'on peut utiliser l'approximation affine obtenue entre 20 et $28^{\circ}C$ pour des températures plus importantes.

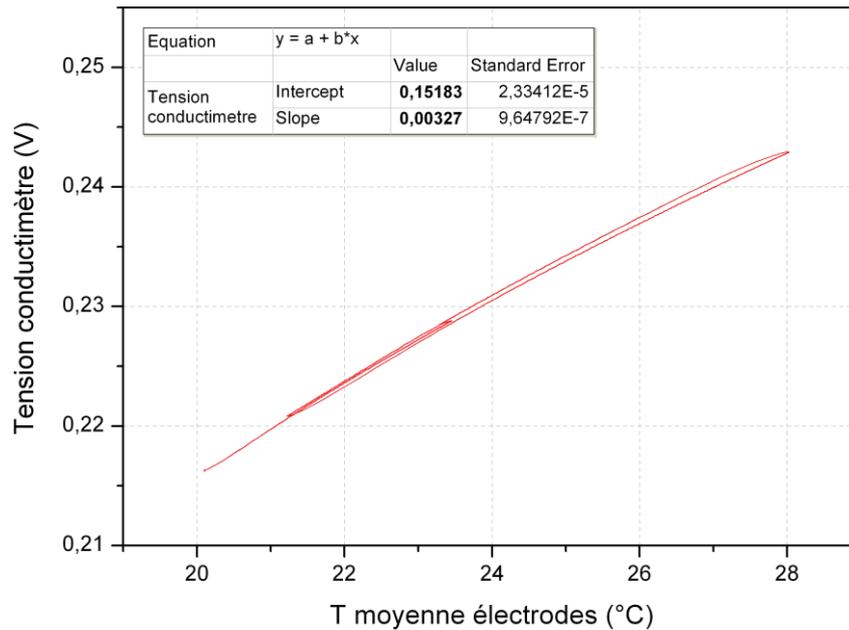


Figure IV- 40 : Tension mesurée aux bornes de la résistance shunt en fonction de la moyenne de la température des électrodes.

$$U_{shunt}(T_{moy}) = 3,27 \cdot 10^{-3} T + 0,1518 \quad \text{Eq. (4.33)}$$

II.6 Protocole expérimental

L'ensemble des injections, dont les résultats seront présentés dans les paragraphes suivants, ont été réalisées à débit constant. Il s'agit d'injection isothermes, puisque les éléments chauffants ne sont allumés que lorsque la fluide commence à imprégner le début de la préforme, à la suite de quoi l'intensité de la source de chaleur est gardée constante tout au long de l'expérimentation. Par ailleurs, des simulations ont été nécessaires pour choisir l'intensité du flux dissipé dans les chaufferettes. Il s'agit d'un compromis entre un flux suffisamment important pour que les capteurs puissent les détecter, et assez faible pour ne pas perturber l'écoulement. En effet, la viscosité, la tension de surface et l'angle de contact sont des grandeurs fortement dépendantes de la température. La figure suivante montre d'ailleurs comment la viscosité diminue de façon exponentielle avec la température. Le flux choisi est de 1600 W/m^2 , et permet de ne pas dépasser une montée de la température moyenne de la préforme de plus de 10°C , ce qui représente déjà une baisse significative de la viscosité.

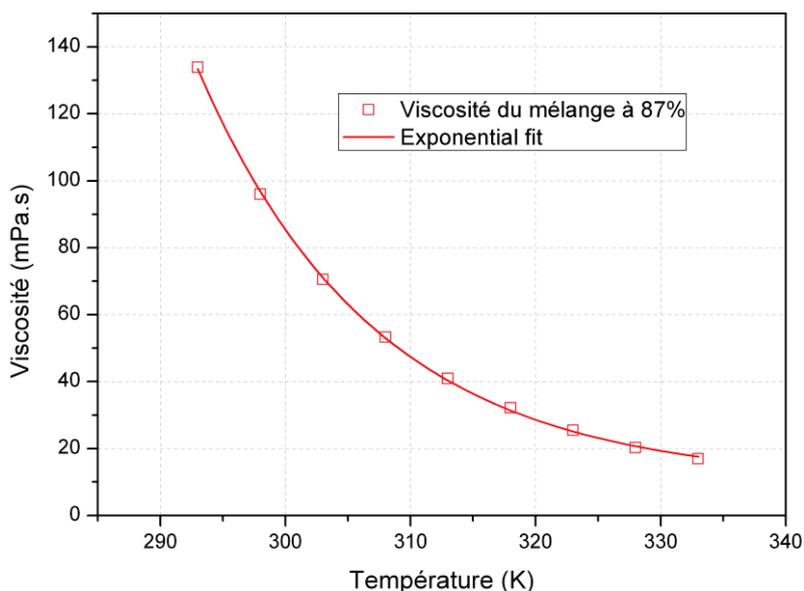


Figure IV- 41 : Evolution de la viscosité d'un mélange de 87% de glycérol et de 13% d'eau en fonction de la température [100].

La préforme fibreuse est constituée de 5 plis qui sont découpés et disposés avec soin dans la cavité moulante. L'épaisseur de la cavité moulante est réglée à $2,74 \text{ mm}$, ce qui correspond à un taux volumique de fibres de 49% avec une incertitude type de $0,5 \%$ (voir Annexe E pour le calcul détaillé). Une attention particulière est portée aux positions des fils de trame, qui sont disposés de façon spécifique. Pour s'assurer que ces fils, qui sont orientés perpendiculairement à l'écoulement, ne se superposent pas, leurs positions sont alternées entre chaque pli. On obtient ainsi un milieu fibreux plus homogène.

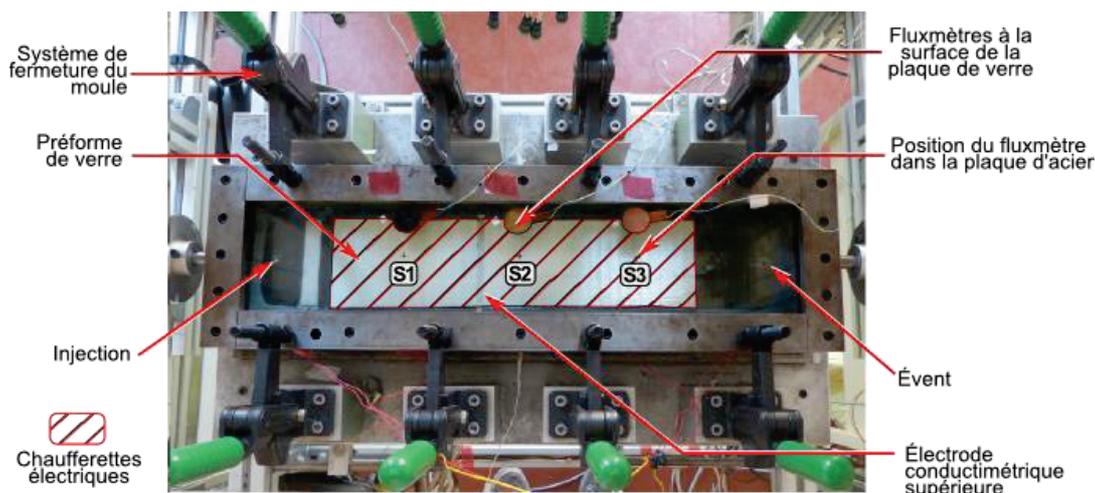


Figure IV- 42 : Vue du renfort disposé dans le moule avant une injection.

III Modélisation des transferts de chaleur

Durant l'imprégnation d'un renfort fibreux par un fluide, on observe un changement manifeste des propriétés thermophysiques du milieu poreux (masse volumique, chaleur spécifique et conductivité thermique) pendant l'injection, passant d'un état complètement sec ($S=0$) à un état de saturation maximale ($S=1$). A titre d'exemple, le tableau suivant rappelle les contrastes du terme capacitif et de la conductivité thermique transverse entre $S=0$ et $S=1$. Le premier est multiplié par 2,3 grâce à l'arrivée du fluide, tandis que le second est plus que quintuplé. Les transferts de chaleur sont donc fortement influencés par le passage du liquide, et peuvent donc être exploités pour estimer la saturation.

	$\lambda_z (W.m^{-1}.K^{-1})$	$(\rho C_p) (J.kg^{-1}.K^{-1})$
S=0	0,11	$1,1.10^6$
S=1	0,58	$2,57.10^6$

Tableau 7 : Contrastes de conductivité thermique transverse et du terme capacitif pendant l'injection.

III.1 Modélisation des transferts de chaleur

Dans cette étude, on ne résout pas à proprement parler une équation d'écoulement au sens de la mécanique des fluides. En réalité, une équation de convection-diffusion est résolue, dans laquelle la saturation est prise en compte à travers l'évolution des propriétés thermophysiques du milieu poreux ρ , C_p et λ . Ces paramètres deviennent des fonctions de la saturation, qui est elle-même dépendante de la position dans le banc (x) et du temps (t) (Eq. 4.34). Autrement dit, les propriétés thermophysiques du composite dépendent de la valeur de la saturation à l'abscisse et à l'instant considéré.

$$(\rho C_p(S(x, t))) \frac{\partial T}{\partial t} + (\rho C_p(S(x, t))) \vec{u} \vec{\nabla} T = \vec{\nabla} \cdot (\lambda(S(x, t)) \vec{\nabla} T) \quad \text{Eq. (4.34)}$$

Cette équation est résolue avec la méthode des éléments finis à l'aide du logiciel Comsol Multiphysics™.

Concernant la conductivité thermique transverse λ_z , son évolution en fonction de la saturation est issue des travaux de modélisation par homogénéisation que nous avons présentés dans le chapitre précédent.

La conductivité plane λ_x et le terme capacitif (ρC_p) sont quant à eux modélisés de façon simple par une loi des mélanges, qui impose une évolution linéaire entre l'état insaturé ($S=0$) et l'état saturé ($S=1$). Ces valeurs limites sont issues des résultats expérimentaux présentés dans le chapitre précédent.

$$\lambda_x(S_T) = (\lambda_x)_{S_T=0} + S_T [(\lambda_x)_{S_T=1} - (\lambda_x)_{S_T=0}] \quad \text{Eq. (4.35)}$$

avec

$$(\lambda_x)_{S_T=0} = \lambda_{fibre} \phi + \lambda_{air} (1 - \phi) \quad \text{Eq. (4.36)}$$

$$(\lambda_x)_{S_T=1} = \lambda_{fibre} \phi + \lambda_{liq} (1 - \phi) \quad \text{Eq. (4.37)}$$

$$(\rho C_p)(S_T) = (\rho C_p)_{S_T=0} + S_T [(\rho C_p)_{S_T=1} - (\rho C_p)_{S_T=0}] \quad \text{Eq. (4.38)}$$

Avec

$$(\rho C_p)_{S_T=0} = (\rho C_p)_{fibre} w_f + (\rho C_p)_{air} (1 - w_f) \quad \text{Eq. (4.39)}$$

$$(\rho C_p)_{S_T=1} = (\rho C_p)_{fibre} w_f + (\rho C_p)_{liq} (1 - w_f) \quad \text{Eq. (4.40)}$$

Le mélange liquide est lui-même composé de deux fluides. Dimoplon a montré en 1972 [101] que la chaleur spécifique d'un mélange de deux fluides pouvait s'exprimer sous la forme d'une moyenne des deux chaleurs spécifiques pondérée par la fraction massique de chaque phase.

$$(C_p)_{liq} = C_{p_{eau}} w_{eau} + C_{p_{glycerol}} w_{glycerol} \quad \text{Eq. (4.41)}$$

En faisant l'hypothèse que l'interface liquide/air est parfaitement plane, le terme de vitesse convective noté \vec{u} dans l'équation, est assimilé à une vitesse interstitielle moyenne dans le renfort, c'est-à-dire à la vitesse au sens de Darcy.

$$u = \frac{Q}{A(1 - \phi_f^c)} \quad \text{Eq. (4.42)}$$

où Q est le débit volumique imposé exprimé en m³/s, A la section de la cavité moulante et ϕ_f^c le taux volumique de fibres.

La vitesse u n'est imposée dans le domaine que là où la saturation n'est pas nulle. Cette vitesse doit être définie par une fonction de Heaviside. Cependant, pour des raisons numériques, il faut que la fonction soit continue, c'est pourquoi on approche la fonction de Heaviside par l'équation suivante [102], qui est continue.

$$H(x, t) = \frac{1}{2} \lim_{k \rightarrow 0} \left(1 + \tanh \left(\frac{-x + x_i(t) + l}{k} \right) \right) \quad \text{Eq. (4.43)}$$

$$k = 2 \cdot 10^{-4}$$

III.2 Profil de la courbe de saturation

Dans la littérature, de nombreux auteurs s'accordent à dire que le profil de saturation d'une préforme fibreuse imprégnée par un liquide est décrit par une courbe caractéristique, qui est retrouvée invariablement par des moyens expérimentaux [90], [91], [94], [103] ou des méthodes numériques [71], [93], [97]. Elle dessine une sigmoïde présentant plusieurs parties caractéristiques : une première pente forte correspondant au phénomène d'avance-retard entre les écoulements dans les macro- et les micro-canaux, puis la pente d'adoucit pour tendre vers une saturation maximale. Cette courbe typique de saturation peut être modélisée grâce à 3 paramètres (voir Figure IV- 43):

- l, la longueur du premier front insaturé
- y_i la valeur de la saturation à la rupture de pente
- S_{max} la valeur maximale de la saturation, qui est atteinte en début de préforme.

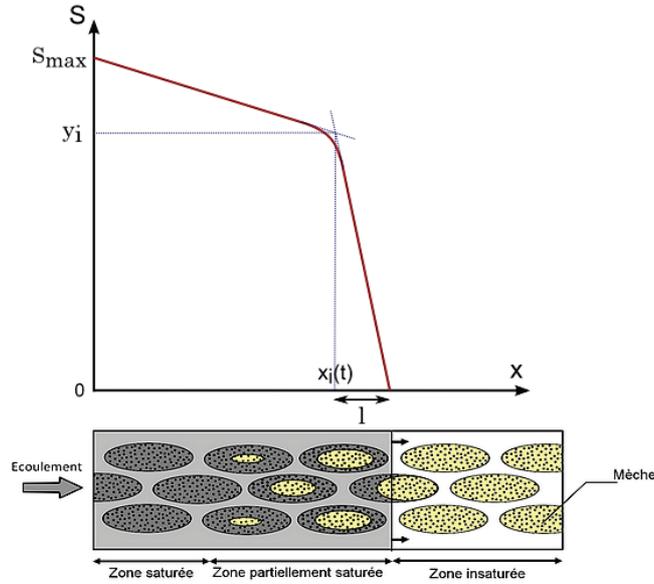


Figure IV- 43 : Modélisation d'une courbe typique de saturation grâce aux paramètres l , y_i et S_{max}

La courbe est alors approximée par l'addition de deux équations de droites (Eq. (4.44) et (4.46)) ainsi qu'un morceau de parabole de largeur $2l_0$ (Eq. 4.45) pour assurer la continuité des pentes. Ces équations sont donc dépendantes de l'espace et du temps, comme on le voit ci-dessous.

$$\forall S \in \llbracket 0; x_i(t) - l_0 \rrbracket \quad S(x, t) = \frac{y_i - S_{max}}{x_i(t)} \cdot x + S_{max} \quad \text{Eq. (4.44)}$$

$$\forall S \in \llbracket x_i(t) - l_0; x_i(t) + l_0 \rrbracket$$

$$S(x, t) = \frac{[(x_i(t) + l)x^2 + (-2x_i(t)^2 + (2l_0 - 2l)x_i(t) - 2ll_0)x - x_i(t)^3 + (2l_0 - l + 2)x_i(t)^2 + [-l_0^2 + (-2l - 2)l_0 + 2l]x_i(t) + 3ll_0^2 + 2ll_0]y_i}{4ll_0x_i(t)} \quad \text{Eq. (4.45)}$$

$$- \frac{lS_{max}x^2}{4ll_0x_i(t)} + \frac{(2lS_{max}x_i(t) + 2ll_0S_{max})x}{4ll_0x_i(t)} + \frac{lS_{max}x_i(t)^2}{4ll_0x_i(t)} + \frac{(-2l_0 - 2)S_{max}x_i(t)}{4ll_0x_i(t)} + \frac{(-3l_0^2 - 2ll_0)S_{max}}{4ll_0x_i(t)}$$

$$\forall S \in \llbracket x_i(t) + l_0; x_i(t) + l \rrbracket \quad S(x, t) = \left(\frac{-y_i}{l}\right)x + \frac{y_ix_i(t)}{l} + y_i \quad \text{Eq. (4.46)}$$

De plus, lorsque les injections sont réalisées à débit constant, la vitesse interstitielle moyenne est constante, donc le rapport de force entre les forces visqueuses et les forces capillaires est lui aussi constant. Par conséquent, lorsque le milieu poreux est homogène et sans défauts, la courbe de saturation n'est que « translaturée », et sa forme n'évolue pas significativement le long de la préforme, ce qui n'est pas le cas lorsque la pression est constante. Guéroult [77], qui a associé injections à pression constante et à débit constant a mis en évidence ce phénomène. Dans notre cas, les paramètres géométriques de la courbe de saturation (l , y_i et S_{max}) sont donc gardés constants, et x_i est le seul paramètre dépendant du temps qui permet de translater la courbe pour décrire l'évolution du profil de saturation.

III.3 Etude de sensibilité

Dans un premier temps, la sensibilité du flux thermique transverse aux trois paramètres géométriques de la courbe de saturation a été calculée. Cette analyse permet de mettre en évidence la pertinence de la conception du banc expérimental. La sensibilité réduite X_w d'une variable Z à un paramètre w est exprimée par :

$$X_w = w \frac{\partial Z}{\partial w} \quad \text{Eq. (4.47)}$$

La Figure IV- 44 rassemble l'ensemble des courbes de sensibilités pour les paramètres l , y_i , S_{\max} , ainsi que pour la conductivité thermique plane λ_x et le terme capacitif (ρC_p) du composite.

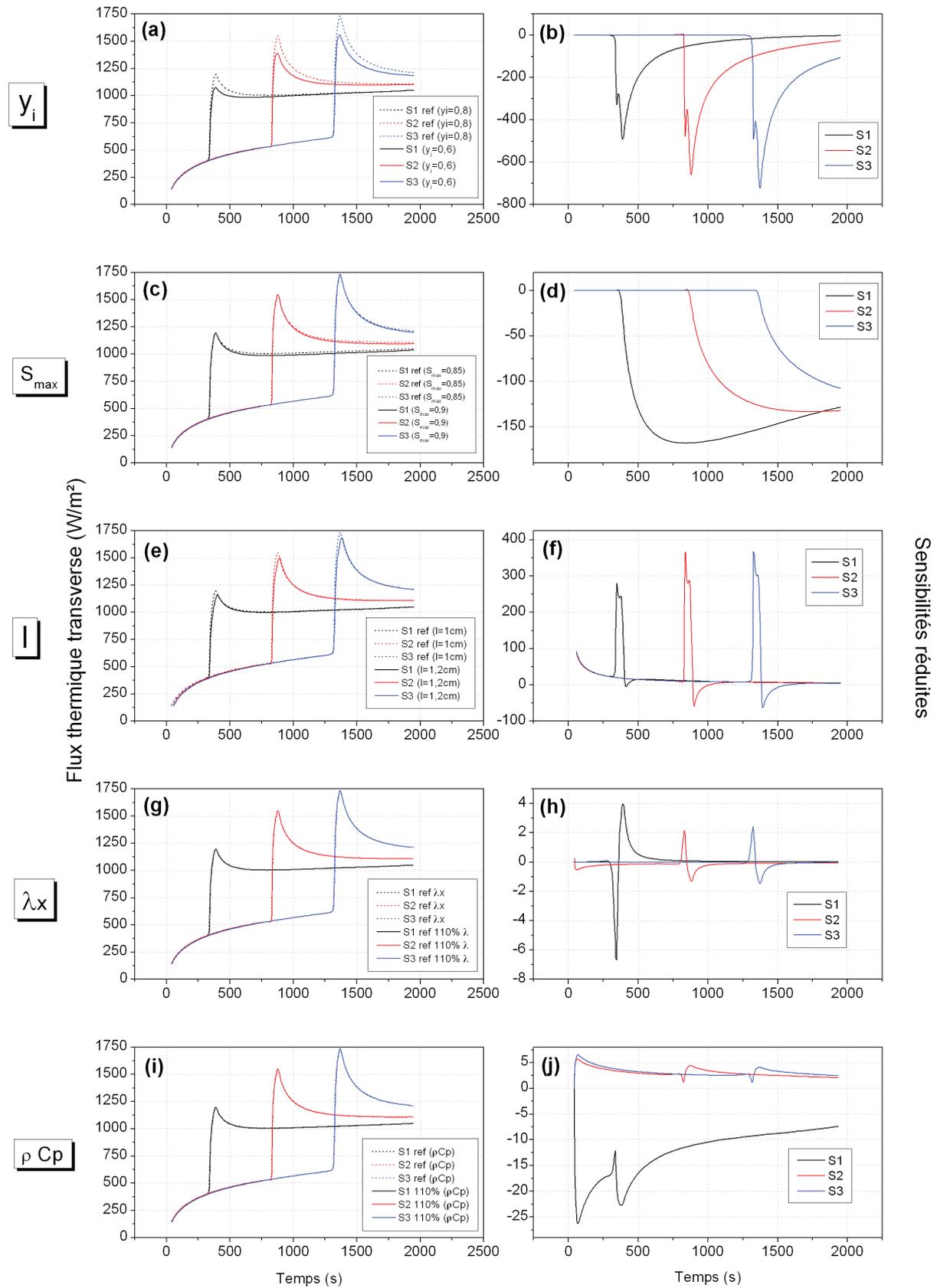


Figure IV- 44 : Sensibilités des flux de chaleur aux paramètres de la courbe de saturation ainsi qu'à λ_x et (ρC_p)

On remarque que le flux de chaleur mesuré par les fluxmètres est sensible à tous les paramètres de la courbe de saturation (Figure IV- 44 encadrés b, d et f), et à S_{max} dans une moindre mesure (Figure IV- 44 encadrés c et d), ce qui rend possible l'identification de celle-ci par la thermique. D'autre part, on peut constater sur les encadrés g et h qu'une forte variation de la conductivité plane du composite n'a qu'une influence négligeable sur les flux thermiques mesurés, ce qui justifie que l'analyse par homogénéisation du paragraphe III.3 du chapitre précédent n'a pas été reproduite pour la conductivité plane. Ceci s'explique par la faible conductivité des fibres de verre. Si la préforme avait été constituée de fibres de carbone beaucoup plus conductrices, les transferts de chaleur dans le plan n'auraient pas pu être négligés. De la même manière, on note une faible influence du terme capacitif du composite sur les flux transverses mesurés (encadrés i et j). Dans ce contexte, l'emploi de simples lois des mélanges pour modéliser l'évolution de ces deux paramètres est donc parfaitement justifiable.

IV Expériences préliminaires

Une série d'expériences préliminaires a été réalisée dans le but de déterminer avec précision les conditions aux limites du banc expérimental, et de valider les propriétés des matériaux composant celui-ci. Au total, trois configurations ont été testées :

- Renfort sec
- Liquide modèle seul statique
- Composite saturé statique

Les résultats principaux de ces essais sont présentés dans les paragraphes suivants. La première partie s'attache à décrire les conditions aux limites utilisées dans la modélisation.

IV.1 Détermination des conditions aux limites

Un modèle de conduction 2D est réalisé, afin de comparer les données expérimentales à la simulation numérique. La figure suivante montre une vue d'ensemble du moule simulé et des conditions aux limites associées.

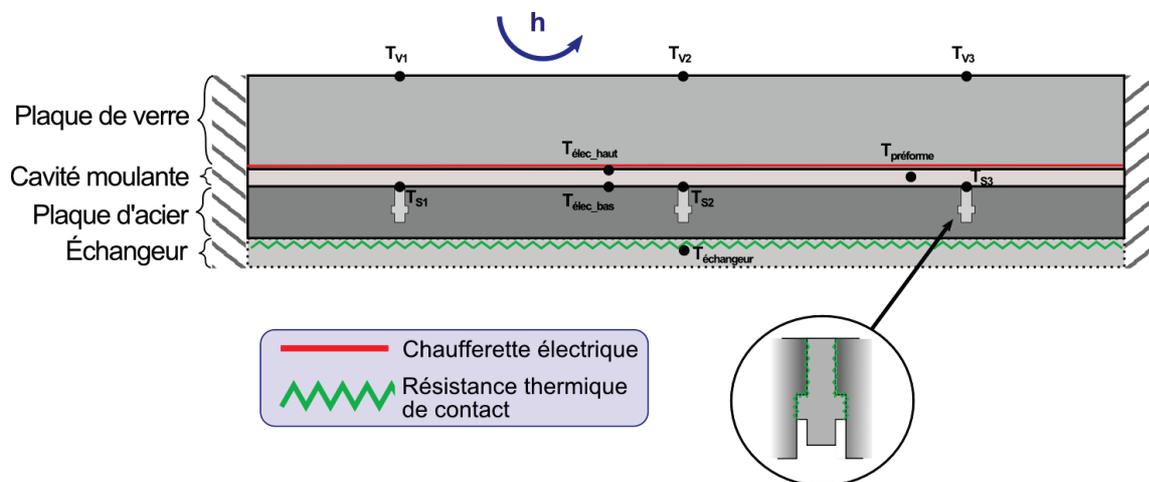


Figure IV- 45 : Schéma du moule et de ses conditions aux limites

Les conditions aux limites imposées sont les suivantes :

- Les parois latérales du moule sont adiabatiques.
- Une condition de troisième espèce est imposée sur la surface supérieure du moule. Le coefficient d'échange h est calculé à partir des mesures de température de surface et du flux à la surface de la plaque de verre. Le coefficient h calculé à la position i est donné par

$$h_i = \frac{\varphi_i}{(T_{V_i} - T_{ambient})} \quad \text{Eq. (4.48)}$$

Où φ_i est le flux thermique mesuré par les fluxmètres à gradient tangentiel à la position i , T_{V_i} la température de surface mesurée à la position i , et $T_{ambient}$ la température de la pièce mesurée par le thermocouple du même nom.

- Les chaufferettes sont modélisées par une source surfacique de flux. La valeur de ce flux est obtenue de l'expérience, par mesure des tensions et courants.
- La géométrie exacte des capteurs a dû être modélisée en raison des résistances thermiques de contact qui existent entre ceux-ci et la plaque d'acier. La valeur de ces résistances est imposée à une valeur de $5.10^{-4} m^2.K.W^{-1}$ et correspond à une valeur typique de la résistance thermique de contact entre deux pièces métalliques.
- Une feuille de graphite a été insérée à l'interface entre l'échangeur et la plaque en acier, afin d'assurer un bon contact thermique entre les éléments. Néanmoins, il existe là aussi une résistance thermique qu'il faut prendre en compte. Par conséquent, l'échangeur n'est pas modélisé dans la simulation, et une condition de troisième espèce est imposée sur la partie inférieure de la plaque, selon

$$\varphi = \frac{1}{RTC} (T - T_{échangeur}) \quad \text{Eq. (4.49)}$$

avec RTC la valeur de la résistance thermique de contact, et $T_{échangeur}$ la température mesurée par le thermocouple du même nom, placé entre la feuille de graphite et l'échangeur.

En conclusion, si on considère que les propriétés des matériaux ont été déterminées avec précision (voir chapitre précédent), seule la valeur de la résistance thermique liée à la feuille de graphite reste à déterminer. Les essais préliminaires, qui sont détaillés dans les parties suivantes, vont permettre de l'évaluer.

IV.2 Essai sur renfort sec

Pour cet essai, le renfort a été introduit seul dans la cavité moulante. Aucune injection n'est réalisée dans ce cas. En partant d'un état isotherme, un échelon de tension est ensuite appliqué sur les chaufferettes, et l'évolution de toutes les températures et de tous les flux est enregistrée. Les paramètres matériaux de la modélisation sont rassemblés dans le Tableau 8.

	Renfort	Matrice (air)	Composite	Acier	Verre
Masse volumique ($kg.m^{-3}$)	2550	1,2	1249	7850*	2550*
Chaleur spécifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	803	1006	803	460*	803*
Conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	1,0	0,026	$\lambda_x=0,51$ $\lambda_z=0,104$	35*	1,13*
Taux de fibres (% _v)			49		

Tableau 8 : Données thermophysiques de la modélisation (les valeurs avec astérisque sont des données fabricant).

L'exploitation des températures et des flux à la surface du verre (Figure IV- 46 et Figure IV- 47) permet de déterminer le coefficient d'échange h. Sa valeur moyenne est estimée à $7 W.m^{-2}.K^{-1}$, comme on le voit sur les figures suivantes. Cette valeur est classique en convection naturelle.

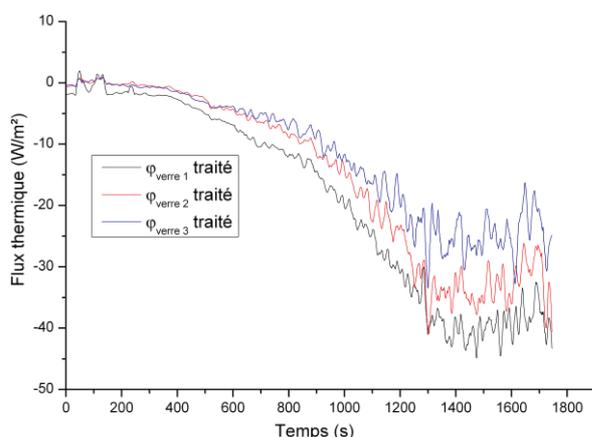


Figure IV- 46 : flux thermiques corrigés donnés par les capteurs placés en surface de verre.

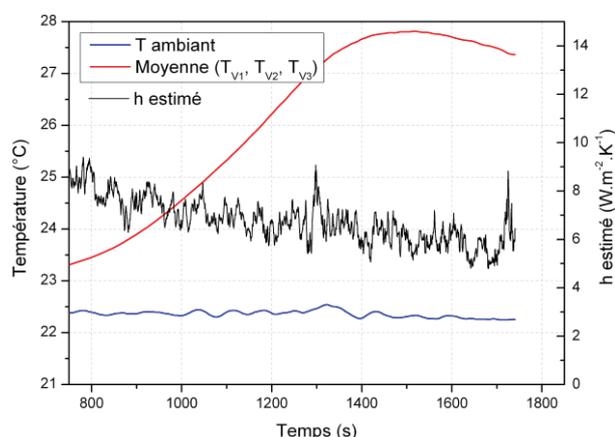


Figure IV- 47 : Températures de surface de verre et coefficient h estimé

La détermination de la condition à la limite manquante, c'est-à-dire la résistance thermique de contact entre l'échangeur et la plaque en acier, est obtenue par minimisation de l'écart entre les températures de surface des capteurs S_1 , S_2 et S_3 numériques et expérimentales. La valeur identifiée est de $3,3.10^{-4} m^2 K.W^{-1}$. En utilisant cette valeur dans le modèle direct, le tracé des flux expérimentaux et numériques montre un très bon accord (Figure IV- 49). Ces résultats amènent à deux conclusions essentielles :

- La procédure d'étalonnage des fluxmètres décrite dans la partie II.5.1 est satisfaisante, puisque les réponses des trois capteurs sont très proches. Ces mesures sont faites dans un banc qui est différent du banc de caractérisation, avec des conditions de montage elles aussi différentes. En cela, ces résultats valident la phase d'étalonnage.
- De plus, la comparaison des flux expérimentaux et des flux numériques laisse apparaître une très bonne corrélation, sans déphasage, et quelque soit le niveau de flux.

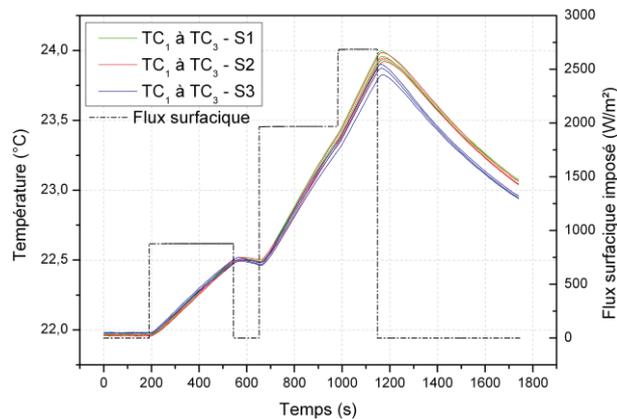


Figure IV- 48 : Evolution des températures des fluxmètres soumis à des échelons de flux

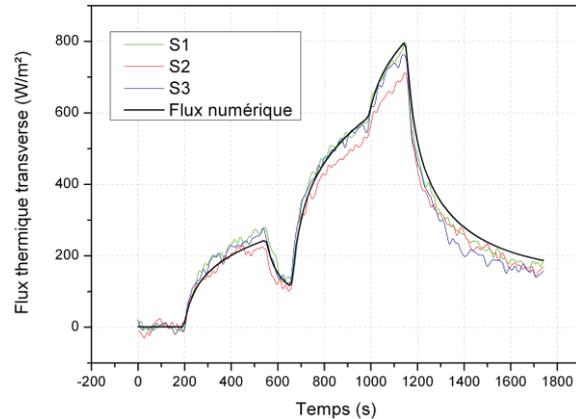


Figure IV- 49 : Comparaison entre les flux expérimentaux (S_1 , S_2 et S_3) et le flux issu de la simulation numérique pour le cas du renfort sec

Remarque : Pour tous les calculs de flux thermique, un filtrage de type Savitzky-Golay a été appliqué sur les signaux de température. En effet, le bruit associé à la mesure de flux de si faibles intensités est important. Par conséquent, on utilise cet algorithme de lissage qui permet de conserver les caractéristiques d'une courbe. Le principe de cet algorithme est présenté dans l'Annexe B.

IV.3 Essai sur liquide modèle seul

Le deuxième essai préliminaire est réalisé sur liquide seul en statique. Il est destiné à

- vérifier la validité des propriétés du liquide mesurées dans le chapitre III.
- confirmer la valeur de la résistance thermique de contact déterminée dans l'essai sur renfort sec
- déterminer l'évolution de la conductivité électrique du liquide en fonction de la température (Cf. II.5.2.b)

Les propriétés du liquide modèle utilisées dans la simulation sont issues du chapitre III et rappelées dans le tableau suivant :

Propriétés du liquide modèle	
Masse volumique ($kg.m^{-3}$)	1219
Chaleur spécifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	2657
Conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	0,345

Tableau 9 : Propriétés thermophysiques du liquide modèle

La résolution du problème avec ces propriétés et la condition à la limite identifiée dans le paragraphe précédent montre à nouveau un excellent accord (voir Figure IV- 50) entre les flux mesurés et les flux numériques. En raison de la relative bonne conductivité du liquide, une part plus importante de flux passe dans la cavité moulante que dans le cas de la préforme sèche. Ces résultats valident donc les

propriétés du liquide que nous avons déterminé dans le chapitre précédent, ainsi que la valeur de résistance thermique identifiée dans la partie précédente (IV.2). D'autre part, notons que le coefficient h calculé pour cet essai est encore égal à $7 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$. A partir de 1100 s , le faisceau de courbes expérimentales semble toutefois se départir légèrement de la courbe numérique. On attribue ce phénomène à des pertes 3D qui apparaissent dans le dispositif. Cet effet sera traité plus en détail dans les parties suivantes.

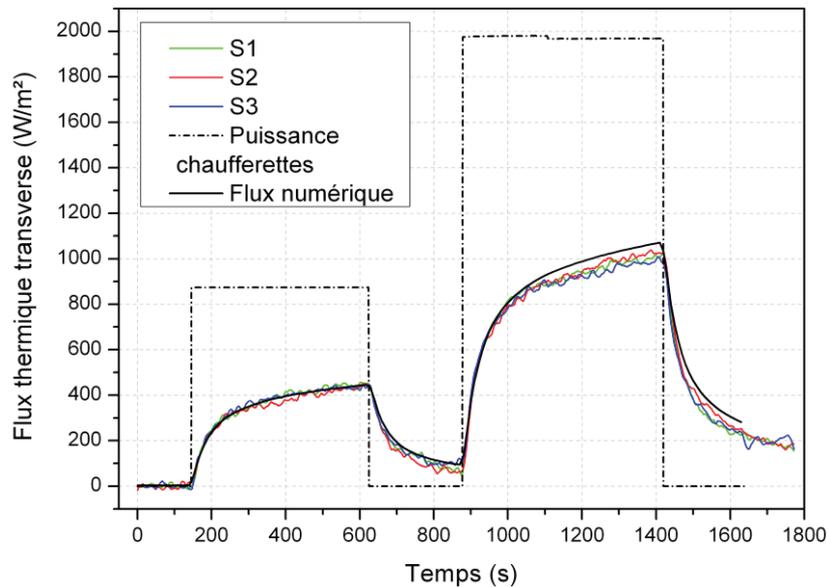


Figure IV- 50 : Comparaison entre les flux expérimentaux (S1, S2 et S3) et le flux issu de la simulation numérique pour le cas du liquide seul.

IV.4 Essai sur composite saturé

Enfin, un essai préliminaire sur le composite saturé a également été réalisé. Pour cette expérience, on a imprégné le renfort à un débit proche du nombre capillaire optimal pour se placer dans les conditions où un minimum de vides est créé. Puis nous avons continué de débiter du fluide pendant plusieurs minutes une fois le front de résine sorti de l'évent, afin de réaliser ce que l'on appelle familièrement un « gavage ». Cette opération permet de garantir une saturation finale proche de 1. L'objectif de cet essai est de valider les propriétés du renfort saturé (Tableau 10), et notamment sa conductivité thermique qui a fait l'objet de nombreux essais dont nous avons fait état dans le chapitre précédent. Il permet accessoirement de confirmer une nouvelle fois les conditions aux limites du banc expérimental.

Propriétés du composite saturé	
Masse volumique (kg.m^{-3})	1859
Chaleur spécifique ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	1382
Conductivité thermique transverse ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	0,574

Tableau 10 : Propriétés thermophysiques du composite saturé

On obtient à nouveau un très bon accord entre les flux numériques et expérimentaux (Figure IV- 51), ce qui apporte du crédit à la méthode d'homogénéisation de la conductivité développée précédemment.

La Figure IV- 52 présente la température simulée à cœur de préforme. Le thermocouple $T_{\text{préforme}}$ ayant été inséré entre le 2^{ème} et le 3^{ème} pli de verre, nous sommes donc en mesure de connaître sa position en z. Cependant, en raison du fort gradient thermique dans la préforme, une petite erreur sur cette position (compaction non homogène par exemple) amène une différence de température importante, c'est la raison pour laquelle la courbe numérique diffère légèrement des mesures.

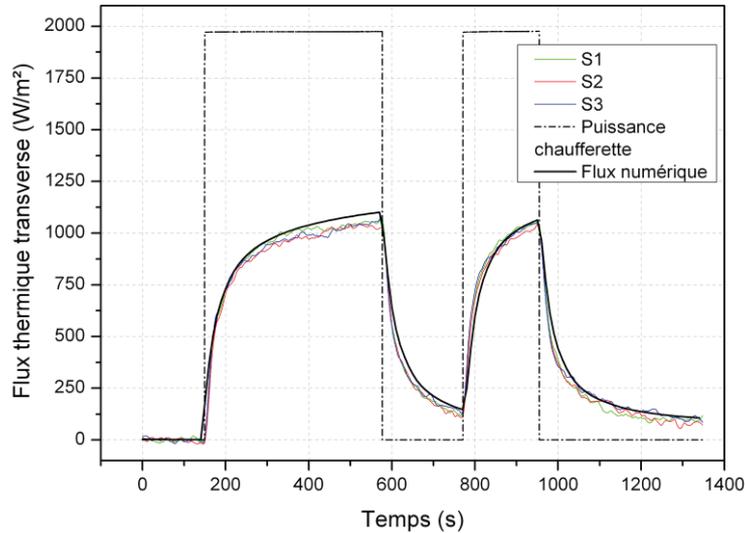


Figure IV- 51 : Comparaison entre les flux expérimentaux (S1, S2 et S3) et le flux issu de la simulation numérique pour le cas du composite saturé

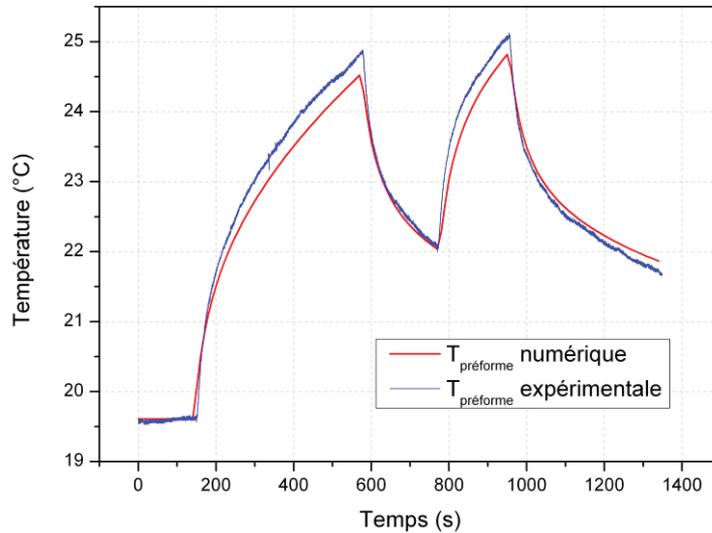


Figure IV- 52 : Températures expérimentale et numérique à cœur de préforme

En conclusion, ces trois essais préliminaires ont été particulièrement utiles puisqu'ils ont permis

- de valider les propriétés des matériaux déterminées dans le chapitre III
- de souligner la pertinence et la validité de l'étalonnage des fluxmètres

- de déterminer des conditions aux limites du banc dont les valeurs associées sont réutilisées pour les injections.

V Résultats et identification de la saturation

Cette partie regroupe la présentation des résultats des injections à débit constant, ainsi que les protocoles d'identification de la saturation par les deux méthodes étudiées : l'exploitation des flux thermiques et la conductimétrie électrique.

V.1 Résultats expérimentaux

Lors de la campagne d'essais, deux injections ont été réalisées sur le banc expérimental. Dans la première, que nous nommerons « injection 1 », le débit imposé était de $2,1 \text{ mL/min}$, ce qui correspond à une vitesse interstitielle moyenne d'environ $0,25 \text{ mm/s}$. Dans la seconde (injection 2), le débit a été doublé pour atteindre $4,2 \text{ mL/min}$. Mis à part le débit, les conditions opératoires sont restées inchangées. Pour chacune de ces manipulations, les flux thermiques transverses ont été exploités afin d'identifier les paramètres de la courbe de saturation. Dans la suite, afin de gagner en lisibilité, les courbes ne seront pas présentées systématiquement en double, puisque les différences de flux et de température ne sont pas forcément manifestes. Le Tableau 11 rappelle les conditions opératoires des deux injections.

	Injection 1	Injection 2
Débit imposé	$2,1 \text{ mL/min}$	$4,2 \text{ mL/min}$
Durée de l'injection	$\sim 2000 \text{ s}$	$\sim 1000 \text{ s}$
Taux de fibres	49 \%_v	
Puissance chaufferette	1600 W/m^2	

Tableau 11 : Conditions opératoires pour les injections 1 et 2

La figure suivante (Figure IV- 53) présente l'évolution des températures des thermocouples des fluxmètres S_1 , S_2 et S_3 au cours du temps pendant l'injection 1. On rappelle que la source de chaleur est activée dès lors que le liquide commence à pénétrer la préforme. Tant que le front n'a pas dépassé le premier fluxmètre S_1 , le thermogramme montre que l'ensemble des thermocouples subissent la même montée en température. Ensuite, lorsque le front passe devant le capteur, le milieu poreux devient brusquement beaucoup plus conducteur, c'est la raison pour laquelle on observe un point d'inflexion dans chaque faisceau de courbes. Les courbes vont ensuite rejoindre la courbe maîtresse correspondant à un milieu totalement saturé, et s'en rapprochent de plus en plus.

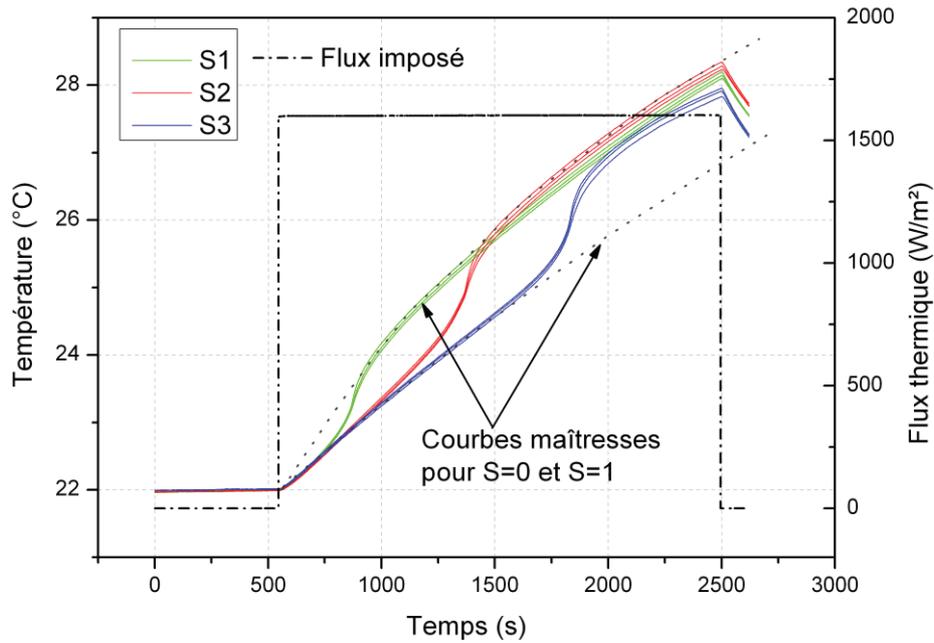


Figure IV- 53 : Evolution des thermocouples composant les fluxmètres pendant l'injection.

En exploitant ces mesures de température selon l'algorithme de Beck, on en déduit les flux transverses, visibles en Figure IV- 54. L'imprégnation et la dissipation de la puissance dans les éléments chauffants sont simultanées et débutent à environ 550 secondes. De la même manière, on remarque un excellent accord entre les 3 capteurs tant que le fluide ne les a pas atteints. En effet, à ce moment-là, il ne s'agit encore que d'un simple problème de conduction 1D dans l'épaisseur.

L'arrivée du fluide à l'aplomb des fluxmètres change considérablement les propriétés thermiques du milieu, et en particulier sa conductivité thermique, qui passe rapidement d'une valeur de $0,1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à plus de $0,4 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Par conséquent, l'équilibre entre le flux sortant par le verre et celui traversant le milieu poreux est rompu, car la part de ce dernier devient beaucoup plus importante. L'arrivée du front devant les capteurs correspond donc à la soudaine augmentation du flux mesuré. Les pics de flux qui suivent cette première phase sont caractéristiques de la forme de la courbe de saturation. Ainsi, on constate que le maximum de chaque pic correspond au changement de pente de la saturation. De plus, la pente du pic est directement liée à la longueur de la zone insaturée qu'on a nommé l .

L'allure de ces pics de flux pendant le remplissage s'explique par un phénomène qui est inhérent à la configuration du banc expérimental. En effet, tant que le fluide n'est pas arrivé, la chaufferette diffuse préférentiellement dans la plaque de verre, comme la préforme sèche est plus isolante que le verre. Celle-ci emmagasine donc énormément de chaleur, d'autant plus qu'elle est très épaisse (40 mm). Les pertes convectives à la surface du verre ne suffisent pas à évacuer cette énergie. On observe alors un flux conductif plan non négligeable qui se propage dans le verre (voir les lignes de flux sur la Figure IV- 55), dans la direction opposée à l'écoulement (vers les zones plus froides). Celui-ci traverse ensuite la cavité moulante au niveau du front, ce qui explique ces pics de plus en plus intenses, dépendamment du temps pendant lequel la chaleur s'est accumulée dans le verre.

Enfin, après le passage du front, les transferts de chaleur deviennent quasi stationnaires. En effet, en raison de la très faible vitesse d'écoulement, le terme d'advection est négligeable. Calculons le nombre de conduction axiale, tel que l'a défini Maranzana [104] . Ce nombre adimensionnel compare les transferts de chaleur par conduction axiale dans la paroi et le flux advectif dû à l'écoulement. Il est défini de la façon suivante :

$$M = \frac{\varphi_{cond}^{\parallel}}{\varphi_{adv}} = \frac{\lambda_s \frac{e_s}{L}}{\rho C e_f V} \quad \text{Eq. (4.50)}$$

où λ_s et e_s sont la conductivité thermique et l'épaisseur de la paroi solide. L est la longueur du canal, ρ et C la masse volumique et la chaleur spécifique du fluide, e_f l'épaisseur du canal et V la vitesse du fluide.

Le nombre de conduction axiale trouvé est très petit (environ 0,05), ce qui signifie que les transferts de chaleur dans les parois sont quasi 1D et perpendiculaires à l'écoulement.

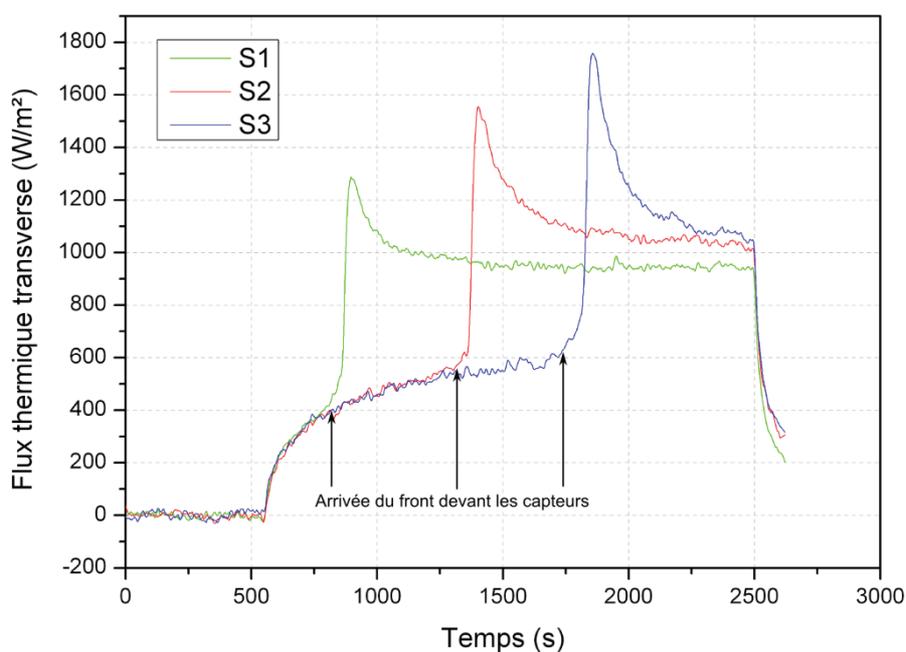


Figure IV- 54 : Flux thermiques transverses expérimentaux au cours de l'injection

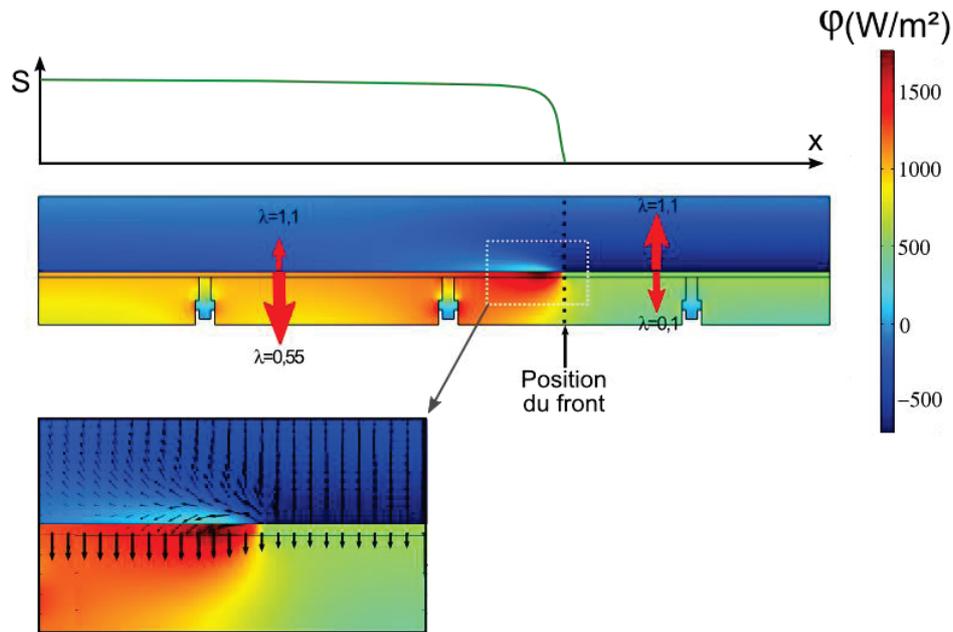


Figure IV- 55 : Cartographie des flux de chaleur transverses pendant l'injection. L'encadré met en évidence les transferts conductifs plans au voisinage du front.

V.2 Identification par la thermique

V.2.1 Protocole

L'identification des trois paramètres de la courbe de saturation est effectuée par minimisation de l'écart quadratique entre les flux mesurés et les flux calculés numériquement. Il s'agit d'une méthode inverse à 3 paramètres, qui est réalisée en utilisant la routine « fminsearch » du logiciel Matlab couplée à Comsol Multiphysics. Le critère de minimisation est défini tel que :

$$J(S_{max}, y_i, l) = \sum_n \sum_{k=1}^3 (\widetilde{\varphi}_k^n - \varphi_k^n)^2 \quad \text{Eq. (4.51)}$$

où k est le numéro du fluxmètre considéré, et n le pas de temps. $\widetilde{\varphi}_k^n$ et φ_k^n représentent respectivement les flux expérimentaux et numériques mesurés par le capteur k à l'instant n.

A la différence des essais préliminaires dont la durée ne dépassait pas quelques minutes, les expériences d'injection sont beaucoup plus longues. Nous avons ainsi réalisé qu'il fallait impérativement prendre en compte les pertes thermiques sur les parois latérales du moule, dont l'influence n'est plus négligeable pour les temps longs. En effet, des effets 3D se manifestent à cause des nombreuses parties métalliques qui entourent le banc et produisent un effet d'ailette. Les pertes sont modélisées par une condition de troisième espèce et le coefficient h équivalent est calculé à partir de relations empiriques [105].

$$\begin{aligned} \text{Plaque verticale dont la hauteur est } < 30\text{cm} & \quad h = 1,42 \left(\frac{\Delta\theta}{H} \right)^{0,25} \\ \text{Plaque horizontale chauffant vers le haut} & \quad h = 1,32 \left(\frac{\Delta\theta}{L} \right)^{0,25} \end{aligned} \quad \text{Eq. (4.52)}$$

$$\text{Plaque horizontale chauffant vers le haut} \quad h = 0,66 \left(\frac{\Delta\theta}{L} \right)^{0,25}$$

Afin d'estimer les paramètres S_{\max} , y_i et l avec justesse, il est indispensable que les instants de passage du front devant les 3 capteurs soient identiques dans la simulation et durant l'expérience. Dans les faits, la vitesse n'est pas rigoureusement constante, en raison des imperfections ou des hétérogénéités de la préforme qui sont inévitables. On fait donc appel aux acquisitions vidéo pour déterminer la vitesse réelle du front au centre de la préforme. La position du liquide est relevée à chaque franchissement d'un fil de trame, qui sont tous espacés de 11 mm . On obtient ainsi l'évolution de la position du front en fonction du temps, que l'on peut voir sur la Figure IV- 56.

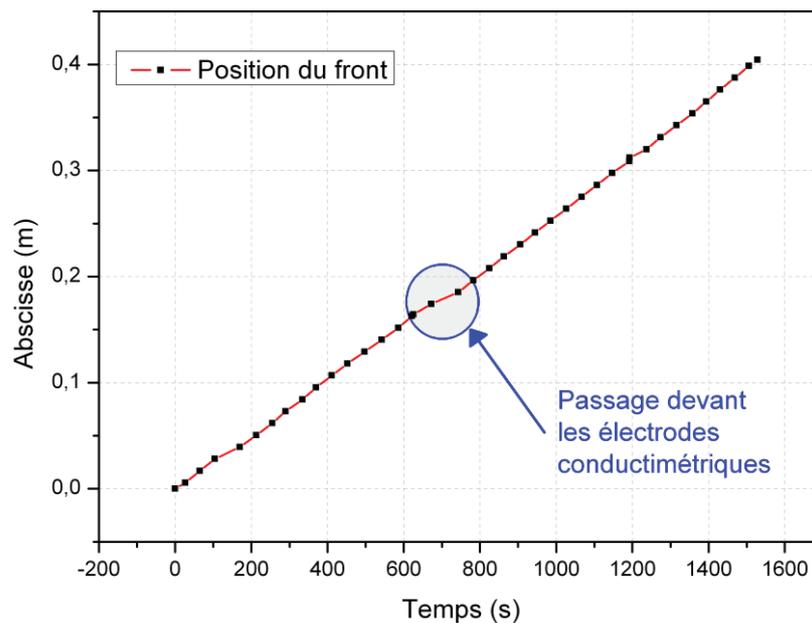


Figure IV- 56 : Position du front au centre de la préforme en fonction du temps (injection 1)

L'évolution de la position est quasi-linéaire, ce qui garantit l'absence de fuites dans le dispositif. De plus, on constate une légère diminution de la vitesse autour de 700 s . Il est très vraisemblable qu'il s'agisse d'un effet dû au franchissement des électrodes de conductimétrie, dont l'épaisseur provoque une variation locale du taux volumique de fibres. En prenant en compte l'épaisseur de chaque électrode en laiton, un rapide calcul a en effet évalué la variation de la fraction volumique de fibre entre les électrodes à environ $+2\%$.

V.2.2 Résultats

Après estimation des paramètres du profil de saturation, la comparaison des flux numériques et expérimentaux (Figure IV- 57) fait apparaître un très bon accord. L'identification sur chaque capteur pris séparément a conduit à des paramètres quasiment identiques (écarts relatifs inférieurs à 3%), confirmant l'hypothèse de la translation du profil de saturation. Ces paramètres sont présentés dans le Tableau 12. Les longueurs des premiers fronts insaturés (paramètre l) sont de l'ordre du centimètre, ce qui est conforme aux résultats qu'avait obtenu Sébastien Guéroult dans sa thèse. Il en est de même

pour les valeurs des autres paramètres. Notons toutefois que ce paramètre ne décrit que la longueur du premier front, la véritable zone insaturée s'étendant généralement sur plusieurs centimètres.

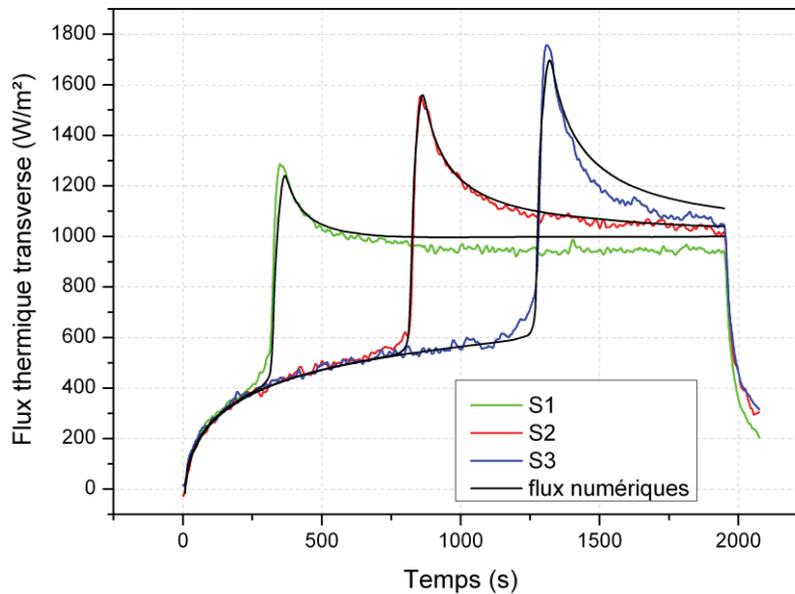


Figure IV- 57 : Comparaison des flux numériques et expérimentaux pendant l'injection 1.

	Injection 1	Injection 2
l	9 mm	7 mm
y_i	0,90	0,97
S_{max}	0,94	0,99

Tableau 12 : Paramètres estimés de la courbe de saturation pour les injections 1 et 2

Malgré la prise en compte des pertes thermiques latérales via un modèle 3D, on peut toutefois remarquer que l'accord entre la simulation et l'expérience n'est pas encore totalement satisfaisant pour les temps longs ($t > 1250s$). En effet, au vu des nombreuses parties métalliques entourant le banc expérimental agissant comme autant d'ailettes (plaque support, système de fermeture, etc), nous avons de bonnes raisons de croire que les pertes de chaleur sont complexes, et que leur prise en compte par un simple coefficient de convection n'est qu'une première approche. Pour parfaire la simulation, il faudrait donc modéliser non seulement le banc expérimental, mais aussi toutes les pièces métalliques environnantes.

V.2.3 Incertitudes

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, les hypothèses que nous avons faites à propos de l'allure du faisceau de courbes de conductivité thermique transverse induisent une incertitude $\pm 5\%$. Le raisonnement se fondait sur l'idée d'une valeur constante de α , le ratio entre micro- et macro-saturation. Nous avons pu borner α à un intervalle compris entre 0,9 et 1,1.

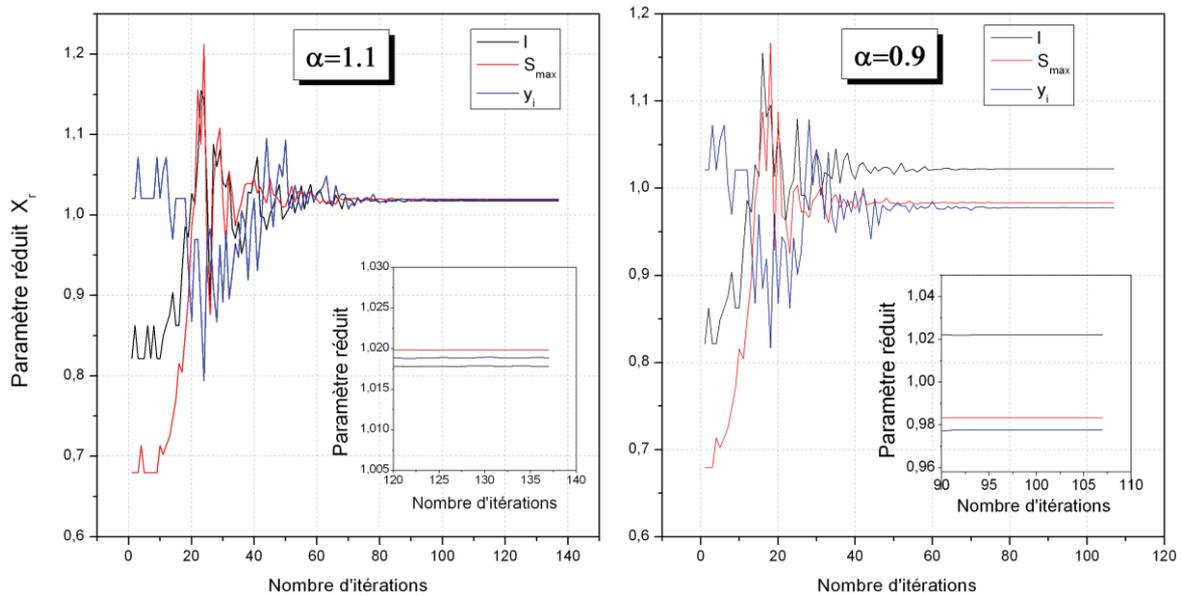


Figure IV- 58 : Evaluation des incertitudes sur l'estimation des paramètres l , y_i et S_{max}

L'objectif de ce paragraphe est de quantifier l'erreur commise en ayant choisi de garder constant le paramètre alpha. Concrètement, on relance la méthode inverse en considérant dans le modèle une conductivité thermique transverse modifiée, correspondant à $\alpha=0,9$ ou $\alpha=1,1$. Le paramètre réduit X_r est défini comme le rapport entre le paramètre estimé avec une valeur de α modifiée et le paramètre estimé pour $\alpha = 1$. Par exemple, pour le paramètre S_{max} nous avons :

$$X_r(i) = \frac{S_{max} \text{ estimé pour } \alpha = i}{S_{max} \text{ estimé pour } \alpha = 1} \quad \text{Eq. (4.53)}$$

Les nouveaux paramètres estimés sont enfin comparés au cas référence où α vaut 1(Figure IV- 58).

	l	y_i	S_{max}
$\alpha=1.1$	1.78 %	1.89 %	1.98 %
$\alpha=0.9$	2.2 %	2.26 %	1.68 %

Tableau 13 : Incertitudes sur les paramètres l , y_i et S_{max} résultant du choix de α .

En conclusion, la variation de alpha dans la plage possible amène une incertitude d'environ +/- 2% sur chaque paramètre (Tableau 13). Cette hypothèse est donc raisonnable, quand on sait que les incertitudes dues à la métrologie thermique atteignent souvent les 5%.

V.3 Identification par conductimétrie

Les données issues du capteur de conductivité sont des tensions efficaces. Il convient donc de les convertir en saturation, puis d'apporter quelques corrections, tenant compte de la température et de la largeur des électrodes.

V.3.1 Conversion tension-saturation

Comme nous l'avons vu dans ce chapitre, le modèle de Maxwell-Wagner fournit une description satisfaisante de la conductivité électrique d'un milieu homogène chargé d'inclusions isolantes. Les expériences menées sur cellule test ont permis de déterminer la conductivité électrique du fluide seul. L'essai préliminaire en saturé n'est pas utilisé pour la détermination de la conductivité électrique du milieu à $s=1$ pour deux raisons :

- L'inconvénient est que les électrodes du banc sont partiellement recouvrantes, ce qui pose problème dans le calcul des surfaces spécifiques d'électrodes.
- Même après gavage, il n'est pas certain que la totalité des vides ait disparu.

Par conséquent, la conductivité électrique du milieu saturé est déduite de la courbe de Maxwell-Wagner. En effet, les fibres de verre sont des cylindres qui, vus en coupe, peuvent tout à fait être assimilés à des particules isolantes comme les bulles. La conductivité du renfort saturé est donc lue sur la courbe de Maxwell pour un taux d'inclusion égal au taux de fibres, doit 49%. On exploite donc la partie droite de la courbe (de 49% à 100% d'inclusions), qui décrit la conductivité électrique de notre renfort allant d'une saturation totale à une saturation nulle.

V.3.2 Correction en température

Comme nous l'avons déjà souligné, la conductivité électrique dépend fortement de la température. Afin de corriger l'effet de celle-ci, on exploite les mesures de températures relevées sur chaque électrode. La simulation numérique a permis de constater que le profil de température dans l'épaisseur du renfort pouvait être considéré linéaire quelque soit l'instant étudié. On fait donc l'hypothèse que la température du milieu situé entre les deux électrodes est égale à la moyenne des températures d'électrodes. La Figure IV- 59 présente l'évolution des micro-thermocouples collés sur chaque électrode, leur valeur moyenne, et l'effet de la correction en température de la courbe de saturation. Notons au passage que la prise en compte de cette correction amène une modification de plus de 35% du profil de saturation.

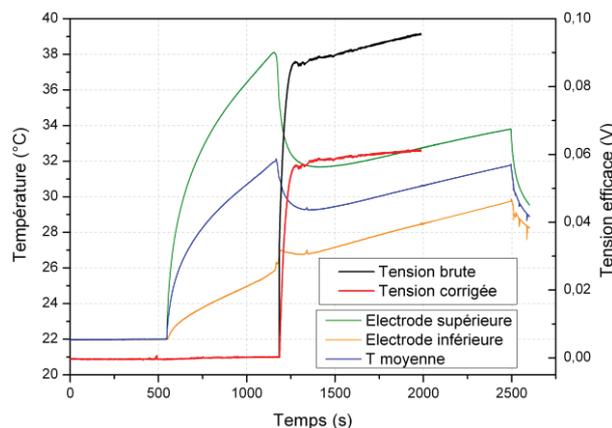


Figure IV- 59 : Evolution de T_{elec_bas} et T_{elec_haut} , et effet de la correction en température.

V.3.3 Correction en temps

Il est également nécessaire de prendre en compte la largeur du capteur conductimétrique. Sa taille impacte en effet la phase de remplissage du volume entre les électrodes. Ainsi, on doit corriger la

saturation obtenue en la comparant avec la courbe que l'on obtiendrait si l'écoulement ne créait aucun vide, que l'on appelle écoulement idéal.

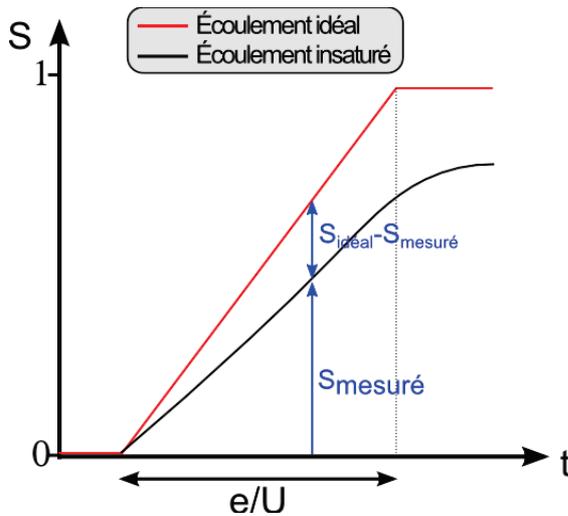


Figure IV- 60 : Principe de correction de la courbe de saturation en temps

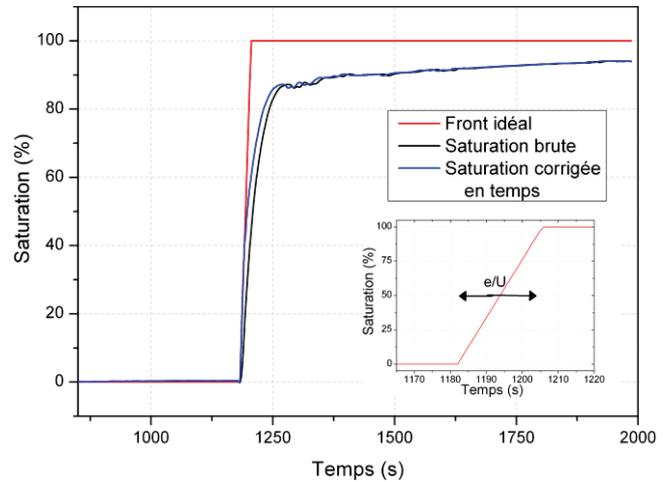


Figure IV- 61 : Effet de la correction en temps de la courbe de saturation

Comme on le voit sur la Figure IV- 60, la correction s'effectue sur la durée du passage du front entre les électrodes, soit un intervalle de temps égal à e/U (avec e la largeur des électrodes et U la vitesse du front). Dans notre cas, le front met une vingtaine de secondes à franchir les électrodes de 6mm de largeur. La saturation corrigée en temps est donc calculée en introduisant un facteur correctif défini comme la saturation mesurée divisée par la valeur de la saturation idéale au point considéré.

$$S_{corrigée} = \frac{\text{Saturation mesurée}}{\text{Saturation idéale}} \quad \text{Eq. (4.54)}$$

La Figure IV- 61 présente l'effet apporté par cette correction en temps.

V.4 Comparaison et discussion

Dans cette partie, nous comparons les résultats obtenus par les deux méthodes : par analyse thermique d'une part, et utilisation de capteurs conductimétriques d'autre part. Les résultats des deux injections sont présentés dans les figures ci-dessous.

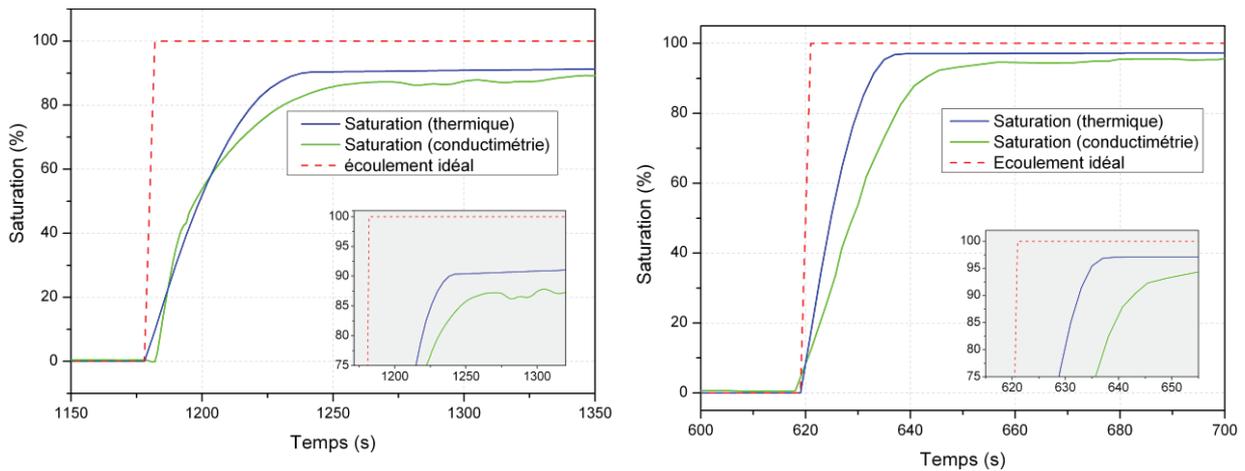


Figure IV- 62 : Comparaison des résultats issus de l'analyse thermique et de la méthode conductimétrique pour l'injection 1 (à gauche) et 2 (à droite)

En normalisant les échelles de temps entre les deux injections, on peut également tracer les résultats sur un même graphique (Figure IV- 63)

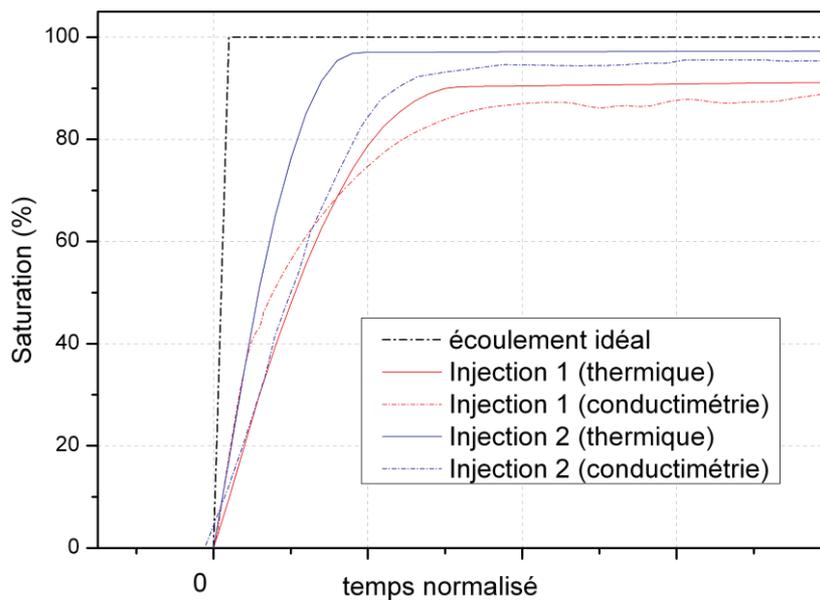


Figure IV- 63 : Comparaison des méthodes pour les deux injections en fonction du temps normalisé.

V.4.1.a Comparaison des méthodes

De manière générale, on remarque une bonne concordance des courbes associées aux deux méthodes. Les paramètres de la courbe de saturation obtenue par conductimétrie sont sensiblement les mêmes que ceux obtenus par l'analyse thermique. Les écarts se situent autour de 10 %, ce qui est acceptable au vu des nombreuses corrections qu'on a dû apporter à la conductimétrie et qui sont autant de sources d'erreur. Même si la méthode thermique souffre d'une sensibilité assez faible sur la valeur de S_{max} , la comparaison avec la conductimétrie montre elle aussi des valeurs très proches.

En revanche, on constate (Figure IV- 63) une différence notable de comportement à proximité du changement de pente de la saturation. La courbe obtenue par mesure électrique présente une rupture de pente plus douce, et légèrement inférieure à l'autre. Cet effet peut être expliqué par deux hypothèses, dont la seconde nous semble plus vraisemblable :

- La courbe de saturation telle que nous l'avons définie dans le modèle thermique n'est pas parfaitement représentative d'une courbe réelle. Il aurait peut-être fallu allonger le segment de parabole afin d'adoucir la transition.
- La deuxième explication tient à la nature même des capteurs qui sont utilisés. En effet, la mesure de flux est réalisée sur un fluxmètre dont le diamètre est de 6mm. A titre d'exemple, ce diamètre correspond à la dimension de seulement 3 ou 4 mèches mises côte à côte. On peut donc la considérer comme ponctuelle, au contraire des électrodes de conductimétrie, qui fournissent une information moyennée sur leur surface, donc sur un volume représentatif plus grand.

V.4.1.b Comparaison des injections

On constate que la saturation associée à l'injection 2 est beaucoup plus marquée que celle obtenue dans l'injection 1. Les taux résiduels de vides sont respectivement de 6 % et 1 %. De plus, la longueur du front insaturé est également modifiée. Ces différences sont notables et peuvent être expliquées en observant la courbe en V décrivant le taux de vides en fonction du nombre capillaire. Comme on le constate sur la Figure IV- 64, l'injection 1 est réalisée à un nombre capillaire relativement éloigné du nombre capillaire optimal, on est donc dans le domaine d'apparition des macrovides. Au contraire, le nombre capillaire associé à l'injection 2 est beaucoup plus proche de la valeur minimisant la création de vides, ce qui explique l'allure plus abrupte du profil de saturation. Cet effet est également confirmé par l'analyse des acquisitions vidéos, qui montrent dans l'injection 1 l'apparition de fortes digitations qui sont caractéristiques de l'écoulement capillaire, comme on peut le voir sur la Figure IV- 65.

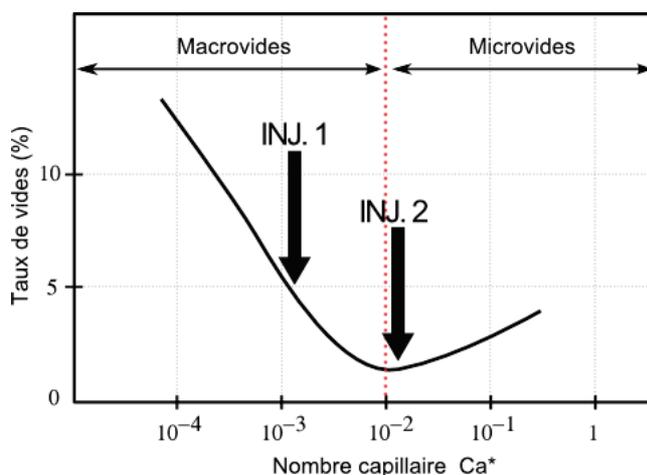


Figure IV- 64 : Evaluation des nombres capillaires associés aux injections 1 et 2

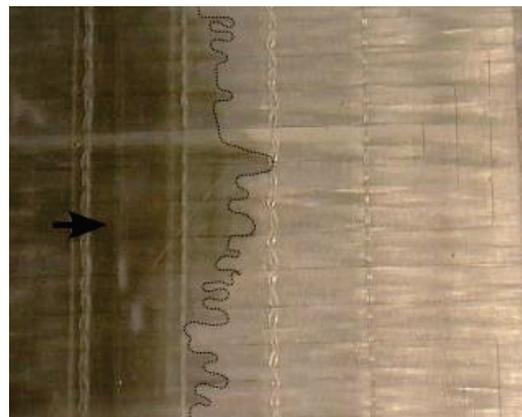


Figure IV- 65 : Capture vidéo faisant apparaître des digitations pendant l'injection n°1

VI Conclusion partielle

Dans ce chapitre, les principaux mécanismes de formation des vides dans les procédés LCM ont été présentés. Nous avons passé en revue les principales méthodes de la littérature qui permettaient de quantifier le scalaire de saturation. Un banc expérimental instrumenté a ensuite été conçu pour rendre possible l'estimation du profil de saturation d'un renfort de fibres de verre par un liquide modèle. Une modélisation simplifiée est proposée, dans laquelle la saturation est prise en compte par les variations des propriétés thermophysiques du milieu poreux.

Dans un premier temps, un soin particulier a été porté à la caractérisation et à l'étalonnage de la métrologie thermique ainsi que conductimétrique. Ensuite, une série d'expériences préliminaires sur des préformes sèches, saturées, ou sur le liquide seul a contribué à déterminer les conditions aux limites du montage.

Enfin, les résultats sont présentés pour deux injections ayant été effectuées à des débits différents. En prenant en compte les pertes 3D, un excellent accord est trouvé entre les flux expérimentaux et numériques. La comparaison de ceux-ci a permis d'identifier les paramètres l , y_i et S_{\max} qui sont caractéristiques des profils de saturation. En cela, nous avons prouvé la faisabilité de la détection de la saturation par une analyse thermique.

Les résultats obtenus par analyse thermique sont confrontés à ceux obtenus par une métrologie déjà éprouvée : celle des capteurs conductimétriques. Leur comparaison montre un très bon accord, ce qui constitue une validation supplémentaire de la méthode développée.

Toutefois, il faut avoir conscience que les incertitudes associées à ces mesures ne sont pas négligeables, en raison des hypothèses faites, des imprécisions de mesure, ou encore des corrections à apporter à posteriori sur les courbes. Pour terminer, une liste non exhaustive des avantages et inconvénients de l'approche développée est dressée.

Avantages

- Méthode non intrusive.
- L'instrumentation d'un banc avec des fluxmètres est relativement aisée et reproductible.
- Très bonne sensibilité sur la valeur y_i
- La méthode nécessite peu de corrections *a posteriori*, par rapport à la méthode conductimétrique.
- Permet de comprendre les effets thermiques de la saturation
- Méthode originale qui préfigure des techniques de tomographie thermique

Inconvénients

- La méthode nécessite le développement d'un modèle direct, et il s'agit d'une méthode inverse dans laquelle la mesure n'est pas directement la saturation.
- Nécessite de connaître l'évolution des propriétés thermiques en fonction de la saturation, ce qui n'est pas immédiat.
- La mesure de flux thermique est délicate par nature
- On a une faible sensibilité sur la valeur S_{\max}

Répetons que le couplage avec la conductimétrie donne des informations cohérentes, dont l'exploitation donnera des résultats nouveaux sur la cinétique de la saturation. Cet aspect sera illustré dans le dernier chapitre.

Références bibliographiques du chapitre IV

- [71] C. H. Park, A. Lebel, A. Saouab, J. Bréard, and W. Il Lee, "Modeling and simulation of voids and saturation in liquid composite molding processes," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 42, no. 6, pp. 658–668, Jun. 2011.
- [72] W. D. D. Bascom and J. B. B. Romans, "Microvoids in glass-resin composites: their origin and effect on composite strength," *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev.*, vol. 7, no. 3, pp. 172–178, 1968.
- [73] P. K. Mallick, *Fiber-reinforced composites: materials, manufacturing and design*. 2008.
- [74] A. Gokce and S. G. Advani, "Simultaneous gate and vent location optimization in liquid composite molding processes," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 35, no. 12, pp. 1419–1432, Dec. 2004.
- [75] J. Bréard, A. Saouab, and G. Bouquet, "Numerical simulation of void formation in LCM," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 34, no. 6, pp. 517–523, Jun. 2003.
- [76] A. W. Chan and R. J. Morgan, "Tow impregnation during resin transfer molding of bi-directional nonwoven fabrics," *Polymer composites*, vol. 14, no. 4, pp. 335–340, 1993.
- [77] S. Guérout, "Analyse expérimentale de la saturation des milieux fibreux à double échelle de pores: application à la mise en œuvre des matériaux composites par procédé RTM," Le Havre University, France, 2012.
- [78] E. Ruiz, V. Achim, S. Soukane, F. Trochu, and J. Breard, "Optimization of injection flow rate to minimize micro/macro-voids formation in resin transfer molded composites," *Composites Science and Technology*, vol. 66, no. 3–4, pp. 475–486, Mar. 2006.
- [79] N. Patel, "Micro-scale flow behavior, fiber wetting and void formation in liquid composite molding," Ohio State University, 1994.
- [80] N. Patel, V. Rohatgi, and L. James Lee, "Micro scale flow behavior and void formation mechanism during impregnation through a unidirectional stitched fiberglass mat," *Polymer engineering and science*, vol. 35, no. 10, pp. 837–851, 1995.
- [81] J. Bréard, Y. Henzel, F. Trochu, and R. Gauvin, "Analysis of dynamic flows through porous media. Part I: Comparison between saturated and unsaturated flows in fibrous reinforcements," *Polymer composites*, vol. 24, no. 3, pp. 391–408, 2003.
- [82] N. Patel and L. James Lee, "Modeling of void formation and removal in liquid composite molding. Part II: Model development and implementation," *Polymer composites*, vol. 17, no. 1, pp. 104–114, 1996.
- [83] F. Lebel, A. E. A. E. Fanaei, E. Ruiz, F. Trochu, and É. Ruiz, "Prediction of optimal flow front velocity to minimize void formation in dual scale fibrous reinforcements," *International Journal of Material Forming*, Sep. 2012.
- [84] T. S. Lundstrom, B. R. Gebart, and C. Y. Lundemo, "Void formation in RTM," *Journal of reinforced Plastics and Composites*, vol. 12, no. 12, pp. 1339–1349, 1993.

- [85] J. S. Leclerc and E. Ruiz, "Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 39, no. 12, pp. 1859–1868, Dec. 2008.
- [86] C. Ravey, F. Lebel, E. Ruiz, Courteau-Godmaire H., and F. Trochu, "Void minimization and optimization of injection velocity in RTM processing," in *19th International conference on composite materials*, 2013, pp. 4214–4223.
- [87] C. Ravey, É. Ruiz, and F. Trochu, "Determination of the optimal injection velocity in resin transfer molding by infrared thermography," in *19th International conference on composite materials*, 2013, pp. 4174–4183.
- [88] J. S. Hayward and B. Harris, "The effect of vacuum assistance in resin transfer moulding," *Composites manufacturing*, vol. 1, no. 3, pp. 161–166, 1990.
- [89] N. Samet, P. Maréchal, and H. Duflo, "Ultrasound monitoring of bubble size and velocity in a fluid model using phased array transducer," *Independent Nondestructive Testing and Evaluation*, vol. 44, no. 7, pp. 621–627, 2011.
- [90] E. Ruiz, F. Lebel, and F. Trochu, "Experimental study of capillary flows, voids formation and void migration in LCM manufacturing," in *FPCM 11*, 2012, no. July, pp. 136–143.
- [91] M. Nordlund and V. Michaud, "Dynamic saturation curve measurement for resin flow in glass fibre reinforcement," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, no. 3, pp. 333–343, Mar. 2012.
- [92] M. T. Van Genuchten, "A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils," *Soil Science Society of America*, vol. 44, no. 92, 1980.
- [93] D. Seto, R. Matsuzaki, A. Todoroki, and Y. Mizutani, "Void formation in an anisotropic woven fiber during resin transfer molding," in *ICCM 18*, 2011, vol. 1, pp. 1–5.
- [94] L. Labat, M. Grisel, J. Breard, and G. Bouquet, "Original use of electrical conductivity for void detection due to injection conditions of composite materials," *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIB - Mechanics*, vol. 329, no. 7, pp. 529–534, Jul. 2001.
- [95] B. Yenilmez and E. Murat Sozer, "A grid of dielectric sensors to monitor mold filling and resin cure in resin transfer molding," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, no. 4, pp. 476–489, Apr. 2009.
- [96] J. a. García, L. Gascón, F. Chinesta, E. Ruiz, and F. Trochu, "An efficient solver of the saturation equation in liquid composite molding processes," *International Journal of Material Forming*, vol. 3, no. S2, pp. 1295–1302, Feb. 2010.
- [97] J. A. García, G. Ll, E. Ruiz, F. Lebel, F. Trochu, and L. Gascón, "Simulation and experimental validation of the saturation in LCM processes," in *FPCM 11*, 2012, no. July, pp. 127–135.
- [98] K. M. Pillai and S. G. Advani, "A model for unsaturated flow in woven fiber preforms during mold filling in resin transfer molding," *Journal of composite materials*, vol. 32, no. 19, pp. 1753–1783, 1998.
- [99] J. V. Beck, *Inverse heat conduction*. 1985.

- [100] E. W. Washburn, "International Critical Tables of Numerical Data, Physics, Chemistry and technology." Knovel, p. 3414, 1926.
- [101] W. Dimoplou, "Estimating specific-heat of liquid mixtures," *Chemical Engineering Journal*, vol. 79, pp. 64–66, 1972.
- [102] M. Abramowitz and S. I.A., *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*, 9th print. 1972.
- [103] S. Guérout, L. Bizet, and J. Bréard, "Experimental determination of void formation and transport in the RTM process," in *FPCM 11*, 2012, no. July, pp. 111–118.
- [104] G. Maranzana, I. Perry, and D. Maillet, "Mini- and micro-channels: influence of axial conduction in the walls," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 47, no. 17–18, pp. 3993–4004, Aug. 2004.
- [105] B. Eyglunet, *Thermique théorique et pratique: à l'usage de l'ingénieur*, Hermes Sci. 1994.

CHAPITRE V

**Approche par modélisation
diphasique : vers l'identification des
perméabilités relatives**

I	NOTIONS DE BASE POUR LA MODELISATION DES ECOULEMENTS DIPHASIQUES	158
I.1	LOI DE DARCY GENERALISEE.....	158
I.2	CONCEPT DE PERMEABILITE RELATIVE	159
I.2.1	<i>Définition et caractéristiques</i>	159
I.2.2	<i>Mesure des perméabilités relatives</i>	160
I.2.3	<i>Corrélations empiriques</i>	160
I.3	LA PRESSION CAPILLAIRE	162
I.3.1	<i>Définition et caractéristiques</i>	162
I.3.2	<i>Mesure de la pression capillaire</i>	164
I.3.3	<i>Corrélations empiriques</i>	165
II	EQUATION DE BUCKLEY-LEVERETT ET ETUDE DE SENSIBILITE	166
II.1	EQUATION DE BUCKLEY-LEVERETT.....	166
II.2	INFLUENCE DES PERMEABILITES RELATIVES SUR LA COURBE DE SATURATION	168
III	COUPLAGE DU SYSTEME PRESSION-SATURATION AVEC LES TRANSFERTS DE CHALEUR.....	171
III.1	DESCRIPTION DU SYSTEME D'EQUATIONS	171
III.2	ESTIMATION DE LA PRESSION CAPILLAIRE	172
III.3	COUPLAGE AVEC LA THERMIQUE ET IDENTIFICATION DES PERMEABILITES RELATIVES	174
III.4	RESULTATS ET DISCUSSION	175
IV	CONCLUSION PARTIELLE.....	177

AU cours de ce chapitre, nous nous attacherons à développer un modèle d'écoulement diphasique décrivant la saturation de chaque phase, ainsi que le champ de pression. Dans l'approche que nous avons adoptée, les deux phases sont caractérisées par des perméabilités dites relatives, qui sont fonction de la saturation de la phase considérée. L'objectif de ces travaux est de coupler ce modèle d'écoulement avec la thermique, afin de démontrer la faisabilité de l'identification des perméabilités relatives par le biais des mesures de flux et de températures. La première partie du chapitre est destinée à faire un rappel des notions de base que l'on rencontre en modélisation des écoulements multiphasiques. Dans la suite, nous présenterons les équations employées, une étude de sensibilité, et les premiers résultats.

I Notions de base pour la modélisation des écoulements diphasiques

La science des écoulements diphasiques dans un milieu poreux rassemble deux domaines d'étude :

- Les écoulements de fluides miscibles : dans ce cas, les fluides considérés sont solubles, ce qui induit qu'il n'existe pas à proprement parler d'interface entre les deux phases. La tension interfaciale étant nulle, ce problème se restreint à l'étude de la dissolution d'un fluide dans l'autre. On parle généralement de dispersion hydrodynamique.
- Les écoulements de fluides immiscibles : dans ce cas la tension interfaciale entre les deux fluides n'est pas nulle, ce qui implique qu'une véritable interface délimite les domaines d'existence de chaque phase. Par conséquent, une différence de pression capillaire existe de part et d'autre de cette interface.

L'air et la glycérine n'étant pas miscibles, les procédés LCM correspondent clairement au second cas. C'est donc l'approche qui est développée dans les paragraphes suivants.

A l'origine, l'écoulement de deux fluides immiscibles dans un milieu poreux a notamment été étudié par l'industrie pétrolière. En effet, on injecte traditionnellement de l'eau sous pression dans les roches souterraines afin d'en chasser le pétrole, qui est ensuite recueilli en surface. L'analogie avec les procédés LCM paraît donc intéressante à exploiter.

I.1 Loi de Darcy généralisée

La loi de Darcy est une loi phénoménologique qui régit l'écoulement d'une phase fluide incompressible dans un milieu poreux. Il s'agit d'une relation couramment employée reliant la vitesse d'écoulement au gradient de pression imposé :

$$\bar{U} = \frac{-\bar{K}}{\mu\phi} \nabla P \quad \text{Eq. (5.1)}$$

où \bar{U} est la vitesse moyenne interstitielle d'infiltration (m.s^{-1}), \bar{K} le tenseur de perméabilité exprimé en m^2 , μ la viscosité dynamique du fluide (Pa.s), ϕ la porosité du milieu poreux, et ∇P le gradient de pression (Pa.m^{-1}).

On s'intéresse ici aux problèmes d'écoulement diphasique, dans lesquels on étudie le mouvement simultané de deux fluides immiscibles. Dans cette approche, chaque fluide est considéré comme un

continuum remplissant complètement le milieu poreux, avec un taux de présence (donc une saturation) qui est fonction du temps et de l'espace. Par conséquent, il semble naturel de transposer le concept de perméabilité établie par la loi de Darcy au cas des écoulements diphasiques, en modifiant sa valeur afin de tenir compte de la présence de la deuxième phase. Wyckoff et Botset [106] ainsi que Muskat *et al.* [107] proposent donc d'écrire la vitesse associée à une phase α de la manière suivante:

$$u_{\alpha} = -\frac{k_{\alpha}}{\mu_{\alpha}\phi} \nabla P_{\alpha} \quad \text{Eq. (5.2)}$$

$$\text{avec } k_{\alpha} = k_{r\alpha} \cdot K \quad \text{Eq. (5.3)}$$

où ∇P_{α} est le gradient de pression dans la phase α considérée. k_{α} est appelée perméabilité effective du milieu poreux à la phase α . Celle-ci dépend à la fois de la structure du milieu poreux (perméabilité au sens géométrique K), et d'un autre nombre adimensionnel qu'on appelle la perméabilité relative (notée $k_{r\alpha}$), qui est compris entre 0 et 1.

I.2 Concept de perméabilité relative

I.2.1 Définition et caractéristiques

Le concept de perméabilité relative est inhérent à la physique des écoulements multiphasiques. En effet, pour une meilleure compréhension de ce phénomène, considérons l'écoulement d'un seul des deux fluides en un point donné. Etant donné qu'une partie des pores au voisinage de ce point est occupé par l'autre fluide, il paraît naturel de supposer que la perméabilité du milieu poreux au fluide considéré soit réduite, puisque son mouvement est contrarié par la présence de l'autre fluide.

En conclusion, tandis que la perméabilité géométrique K est intrinsèque au matériau, les perméabilités relatives à chaque phase sont fonctions de la saturation.

Remarque: Dans la suite de ce paragraphe, pour des raisons de lisibilité, on parlera respectivement de fluide mouillant et de fluide non-mouillant pour désigner le mélange glycérol-eau et l'air. La notation des grandeurs associées à ces phases seront donc cohérentes avec la littérature et indicées w (wetting) et nw (non-wetting).

La Figure V- 1 représente l'évolution typique de courbes de perméabilités relatives en fonction de la saturation. Dans le cas général, il n'est pas exclu qu'il existe des bornes telles que $S_{w0} < S_w < 1 - S_{nw0}$. Dans le cas des LCM, la valeur S_{nw0} correspond aux vides résiduels qui peuvent exister après imprégnation maximale du renfort. De plus, la valeur S_{w0} est toujours nulle pour les composites, puisque le renfort est toujours initialement parfaitement sec.

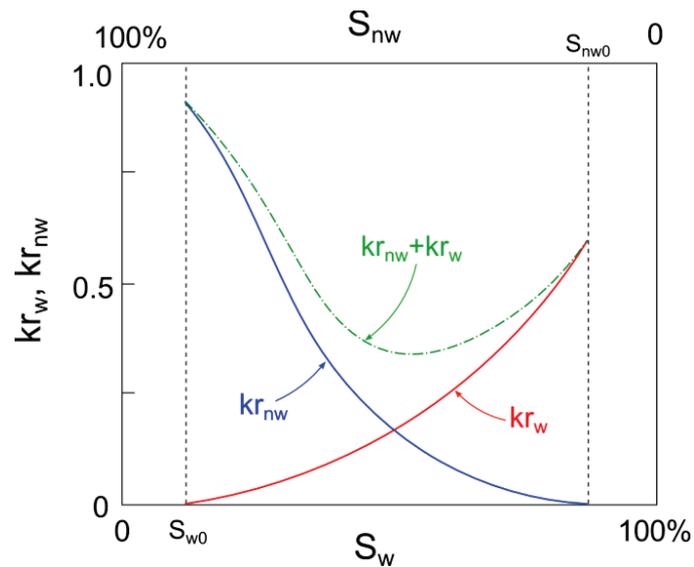


Figure V- 1 : Courbes typiques de perméabilités relatives en fonction de la saturation selon [108].

Lorsque c'est le fluide mouillant qui pénètre dans le milieu poreux, on parle de processus d'imbibition. Dans le cas contraire, il s'agit d'un processus qualifié de drainage. Notons que les courbes de perméabilités mesurées pour des imbibitions sont généralement différentes de celles mesurées pour les drainages. Par conséquent, les courbes de perméabilité relative sont sujettes au phénomène d'hystérésis. De la même manière, certains auteurs tendent à penser qu'elle seraient également sensibles aux gradients de pression. Enfin, comme on peut le voir sur la Figure V- 1, il apparaît parfois que la somme des perméabilités relatives n'est pas toujours égale à 1 (courbe verte). Cet effet est attribué aux interférences qu'un fluide exerce sur l'autre, qui se manifestent lorsque les différences de viscosité entre les deux fluides sont significatives.

I.2.2 Mesure des perméabilités relatives

Les techniques de mesure des courbes de perméabilités relatives sont la plupart du temps réalisées en régime stationnaire. Elles consistent à injecter simultanément les deux fluides à débit constant jusqu'à l'obtention d'un écoulement stationnaire au sein du milieu poreux. Une fois l'équilibre atteint, les saturations de chaque phase sont mesurées, généralement à l'aide d'une pesée, tandis que des débitmètres et des capteurs de pression mesurent les débits de chaque phase et le gradient de pression dans le milieu poreux. Les perméabilités effectives sont ensuite calculées à l'aide de la loi de Darcy généralisée (Eq. (5.2)). La procédure est ensuite répétée pour plusieurs ratios de débits afin de balayer la gamme de saturation désirée. Cette méthode est la plus employée car elle s'avère la plus précise. En revanche, les temps de mise en régime sont généralement longs.

I.2.3 Corrélations empiriques

La mesure des courbes de perméabilité relative étant particulièrement délicate, on fait souvent appel à des corrélations empiriques. La plupart des modèles disponibles dans la littérature font intervenir la

grandeur de saturation effective, qui tient compte de l'éventuelle saturation résiduelle de fluide mouillant avant l'imbibition. Elle est définie par l'équation suivante :

$$S_{e_w} = \frac{S_w - S_{wr}}{1 - S_{wr}} \quad \text{Eq. (5.4)}$$

où S_{wr} est la saturation résiduelle du fluide mouillant. Dans le cas des procédés LCM, le renfort est toujours parfaitement sec avant l'injection, ce qui implique que $S_{wr} = 0$, et donc que saturation et saturation effective sont équivalentes ($S_e = S_w$). Dans la suite de ce chapitre, on ne différenciera donc pas ces deux grandeurs.

- Modèle de Corey

Les corrélations les plus couramment utilisées pour estimer les perméabilités relatives sont les relations de Corey [109], qui supposent une loi en puissance n (avec le plus souvent n compris entre 2 et 4):

$$k_{r_w} = b_w S_{e_w}^n \quad \text{Eq. (5.5)}$$

$$k_{r_{nw}} = b_{nw} (1 - S_{e_w})^n \quad \text{Eq. (5.6)}$$

- Modèle de Brooks et Corey

Brooks et Corey [110] ont modifié les équations précédentes en incluant un paramètre, λ , qui est dépendant de la distribution des tailles de pores.

$$k_{r_w} = S_{e_w}^{\frac{2+3\lambda}{\lambda}} \quad \text{Eq. (5.7)}$$

$$k_{r_{nw}} = (1 - S_{e_w})^2 \left(1 - S_{e_w}^{\frac{2+3\lambda}{\lambda}}\right) \quad \text{Eq. (5.8)}$$

- Modèle de Van Genuchten

Le modèle de Van Genuchten [111] est lui aussi très largement utilisé pour décrire les courbes de perméabilité relative, dans lequel m_{VG} et L sont les paramètres de Van Genuchten. Comme nous l'avons évoqué dans le chapitre III, ce modèle a été utilisé par Michaud [112] afin de modéliser la saturation d'une résine époxy dans un renfort tissé de carbone.

$$k_{r_w} = (S_{e_w})^L \left[1 - \left(1 - S_{e_w}^{\frac{1}{m_{VG}}}\right)^{m_{VG}}\right]^2 \quad \text{Eq. (5.9)}$$

I.3 La pression capillaire

Les phénomènes de capillarité ne peuvent plus être négligés lorsque les injections sont réalisées à des débits relativement faibles, ou encore lorsque les taux de fibres considérés sont élevés. La pression capillaire doit alors être prise en compte dans les modélisations.

I.3.1 Définition et caractéristiques

L'injection d'une résine dans une préforme fibreuse conduit à une occupation diphasique de l'espace poreux, qui est partagé par le liquide et l'air. La localisation de ces phases est déterminée par les phénomènes interfaciaux qui se manifestent préférentiellement à une échelle microscopique. Ils induisent le phénomène qu'on appelle la capillarité. Les interfaces entre le liquide et l'air font avec les surfaces solides un angle déterminé appelé angle de mouillage. Cet angle traduit l'affinité de chacun des deux fluides pour le solide et dépend de la nature chimique de chacune des phases en présence.

De plus, l'interface entre les deux phases est soumise au phénomène de tension interfaciale. La valeur de la tension interfaciale σ (N.m-1) dépend essentiellement de la nature des deux fluides. Dans le cas du couple liquide-gaz, la tension interfaciale est pratiquement une propriété intrinsèque du liquide.

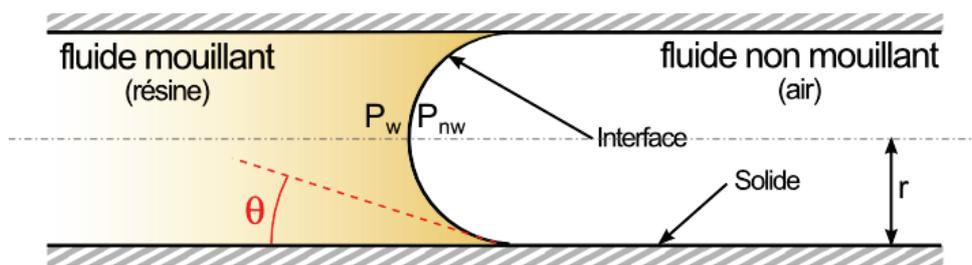


Figure V- 2 : Angle de contact dans un capillaire à l'état stationnaire, lors du déplacement d'un fluide non mouillant par un fluide mouillant.

Dès lors que la courbure interfaciale est non nulle (Figure V- 2), une différence de pression règne entre les deux côtés de l'interface. La pression dans le fluide non mouillant est inférieure à celle qui règne dans le fluide mouillant. On définit ainsi la pression capillaire comme la différence de pression entre la phase non-mouillante (p_{nw}) et la phase mouillante (p_w):

$$p_c = p_{nw} - p_w = p_{air} - p_{liquide} \quad \text{Eq. (5.10)}$$

La pression capillaire représente la faculté d'un milieu poreux à absorber la phase fluide. L'opposé de la pression capillaire est en effet généralement appelé « suction capillaire » dans la science des sols.

Les phénomènes de capillarité dans les milieux fibreux peuvent être assimilés au cas idéal des tubes capillaires, pour lesquels la pression capillaire résultante dérive de la loi de Laplace, et s'écrit de la manière suivante :

$$p_c = \frac{2\sigma \cos \theta}{r} \quad \text{Eq. (5.11)}$$

où σ est la tension interfaciale entre les deux phases fluides, θ l'angle de contact en degré, et r le rayon des tubes capillaires.

On observe que la pression capillaire est inversement proportionnelle au rayon du tube capillaire. Ceci indique que des tubes capillaires avec un faible diamètre induisent des pressions capillaires plus fortes. Dans le cas des textiles fibreux destinés à la mise en forme des composites, c'est donc dans les mèches que celle-ci sera prédominante.

Toutefois, les préformes utilisées en LCM possèdent une géométrie beaucoup plus complexe, en terme de distribution de tailles ou de formes de pore. C'est la raison pour laquelle certains auteurs [113] ont proposé l'introduction d'un facteur de forme adimensionnel F prenant en compte l'orientation des fibres et la direction de l'écoulement. Pour un écoulement 1D, la pression capillaire s'écrit :

$$p_c = \frac{F(1-\phi)}{d_f \phi} \sigma \cos \theta \quad \text{Eq. (5.12)}$$

où ϕ est la porosité de la préforme, et d_f le diamètre des fibres. F est la facteur de forme qui vaut 4 pour un écoulement dans le sens des fibres, et 2 si l'écoulement est perpendiculaire aux fibres. La valeur de F pour des architectures complexes de renfort doit être déterminée expérimentalement.

Dans la littérature relative aux écoulements diphasiques, il est courant de considérer que la pression capillaire est une fonction de la saturation du fluide mouillant. L'angle de mouillage θ à l'équilibre étant dépendant de la direction du déplacement du fluide mouillant (phénomène dit de la goutte d'eau), c'est la raison pour laquelle on observe un phénomène d'hystérésis sur la courbe de pression capillaire, présentée sur la Figure V- 3. Dans le cas des procédés LCM, la phase déplacée est généralement de l'air, le liquide joue donc le rôle de fluide mouillant. Dans ce contexte, le régime d'écoulement correspond toujours à un processus d'imbibition, ce qui impose d'utiliser la courbe du même nom.

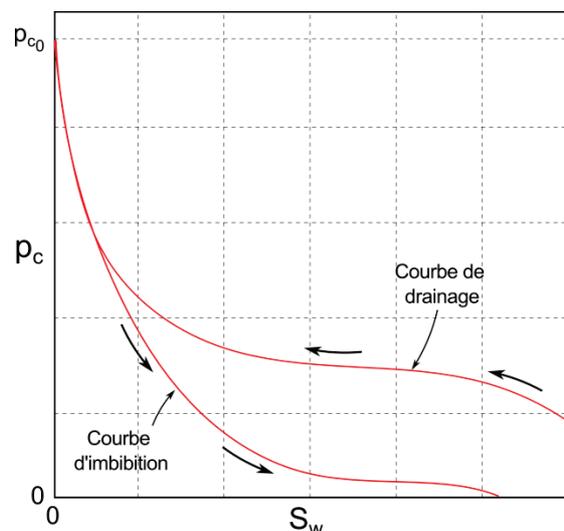


Figure V- 3 : Courbe de pression capillaire typique d'après Killins et al. [114]

I.3.2 Mesure de la pression capillaire

En dehors des milieux modèles constitués de tubes capillaires parallèles entre eux et de même taille, il est assez difficile de décrire l'évolution de la pression capillaire en fonction de la saturation pour des milieux poreux réels. En effet, ceux-ci possèdent souvent des pores dont la forme est complexe et variable.

Par conséquent, de nombreuses méthodes permettant de mesurer la pression capillaire de milieux réels ont été développées. Bear [108] dresse un inventaire complet de celles-ci, dont les plus employées sont :

- La méthode gravimétrique : dans cette méthode, une longue colonne contenant le milieu poreux est initialement occupée par le fluide non mouillant. La partie inférieure de celle-ci est ensuite mise en contact avec le fluide mouillant, qui va spontanément monter par capillarité. Une fois l'équilibre atteint, on mesure la saturation du milieu poreux à différentes hauteurs. La pression capillaire est obtenue par un bilan de force avec les forces de gravité.
- La méthode du diaphragme (ou de désaturation): Parmi les plus utilisées, cette technique est basée sur le drainage d'un échantillon initialement saturé en fluide mouillant. L'échantillon est placé dans une cellule, remplie par le fluide non mouillant. Celui-ci repose sur une membrane perméable dont la porosité est connue avec précision. L'augmentation de la pression du fluide non mouillant provoque le déplacement du fluide mouillant de l'échantillon, qui est collecté dans un tube. La saturation est déduite de la masse de fluide recueilli. Cette technique est très longue puisqu'elle nécessite d'atteindre l'équilibre à chaque point de mesure.

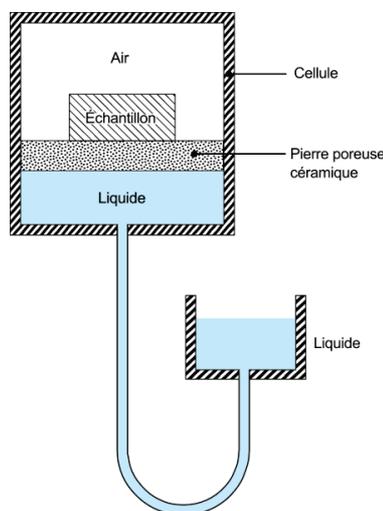


Figure V- 4 : Principe de la mesure par la méthode du diaphragme

- La méthode de centrifugation : l'échantillon initialement saturé en fluide mouillant est soumis à une centrifugation à différentes vitesses de rotation. La force centrifuge a pour effet de faire évacuer le fluide, tandis que la pression capillaire tend à le retenir. Lorsque l'état stationnaire est atteint, les deux forces s'équilibrent. La saturation est alors obtenue par une simple pesée de l'échantillon, et la pression capillaire est calculée à partir de la vitesse de rotation.

I.3.3 Corrélations empiriques

En raison des nombreuses difficultés liées à la mesure de la pression capillaire, des relations empiriques paramétrées sont souvent employées.

- Relation de Brooks et Corey

Brooks et Corey [110] ont comparé de nombreuses données expérimentales issues du domaine de l'hydrologie. En traçant l'évolution de la pression capillaire p_c en fonction de la saturation effective S_e sur une échelle logarithmique, ils ont remarqué que l'on obtenait une droite de pente λ_c et d'ordonnée à l'origine p_b .

Ils concluent que la relation entre la pression capillaire et la saturation pouvait s'écrire sous cette forme :

$$S_e = \left(\frac{p_c}{p_b}\right)^{-\lambda_c} \quad \text{Eq. (5.13)}$$

$$\text{soit } p_{c(BC)}(S_e) = \left(\frac{p_b}{S_e^{\frac{1}{\lambda_c}}}\right) \quad \text{Eq. (5.14)}$$

où p_b est appelé la charge capillaire critique ('bubbling pressure') : c'est la pression minimale qu'il faut appliquer sur le milieu saturé pour initier la formation d'une bulle d'air. Le paramètre λ_c tient compte de la distribution de la taille des pores.

- Relation de Van Genuchten

Le modèle de Van Genuchten [111] est un modèle similaire qui décrit lui aussi l'évolution de la saturation effective en fonction de la pression capillaire. A la différence du précédent, il offre une meilleure description de la pression capillaire pour des saturations proches de 1. L'équation fait intervenir trois paramètres (α_{VG} , n_{VG} et m_{VG}) représentatifs du milieu poreux, dont deux sont à déterminer par exploitation de points expérimentaux caractéristiques.

$$S_e(p_c) = (1 + (\alpha_{VG} p_c)^{n_{VG}})^{-m_{VG}} \quad \text{Eq. (5.15)}$$

$$\text{avec } m_{VG} = 1 - \frac{1}{n_{VG}} \quad \text{Eq. (5.16)}$$

Ce qui conduit à

$$p_{c(VG)}(S_w) = \frac{1}{\alpha_{VG}} \left(S_e^{-\frac{1}{m_{VG}}} - 1 \right)^{\frac{1}{n_{VG}}} \quad \text{Eq. (5.17)}$$

La Figure V- 5 présente à titre d'exemple une comparaison entre les deux modèles. Selon Van Genuchten, un accord entre ceux-ci est trouvé en prenant $\lambda_c = n_{VG} - 2$. Une divergence significative entre les deux modèles n'est atteinte que pour les valeurs de saturation proches de 1.

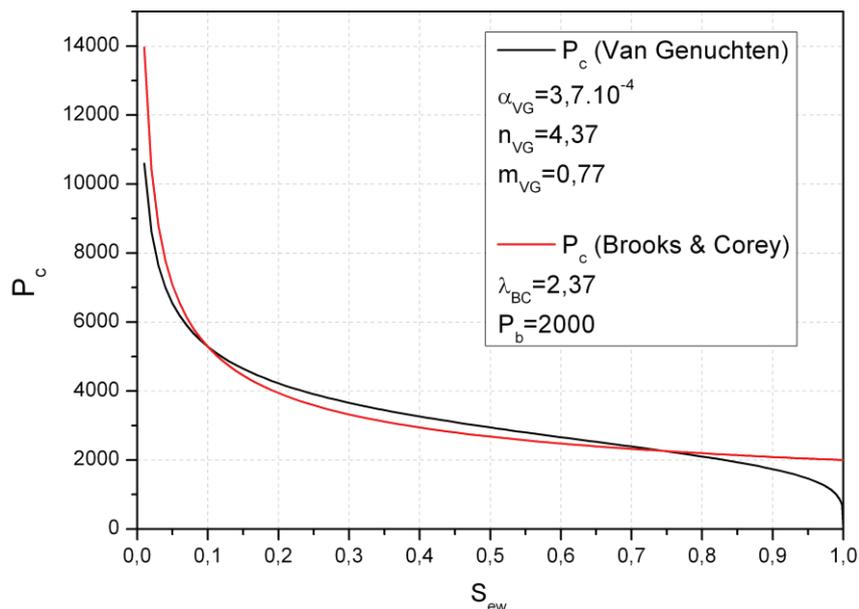


Figure V- 5 : Evolution de la pression capillaire en fonction de la saturation effective : comparaison entre les modèles de Brooks & Corey et Van Genuchten (l'amplitude est choisie arbitrairement).

II Equation de Buckley-Leverett et étude de sensibilité

II.1 Equation de Buckley-Leverett

En raison de sa grande simplicité, nous utiliserons dans un premier temps l'équation de Buckley-Leverett afin d'étudier l'influence des perméabilités relatives sur le profil d'écoulement. L'équation de Buckley-Leverett est basée sur le principe de conservation de la masse pour un écoulement 1D d'un fluide incompressible. Cette équation suppose une injection à débit constant. Il ne s'agit que d'une équation de transport de la saturation, sans prise en compte de la capillarité. Les hypothèses sont les suivantes :

- Le milieu poreux est homogène et sans défauts
- L'air et le liquide remplissent entièrement les pores
- Les forces capillaires et la gravité sont négligées
- Les viscosités sont supposées constantes
- Les propriétés du milieu poreux (perméabilité et porosité par exemple) peuvent varier dans l'espace, mais pas dans le temps.

Remarque: La démonstration de l'équation de Buckley-Leverett est présentée en annexe de ce document. Seules les notions principales sont présentées dans ce paragraphe. Pour plus de précisions, le lecteur est invité à se référer à l'annexe F.

D'après la loi de Darcy généralisée, les vitesses de phase sont proportionnelles au gradient de pression (qui est le même dans les deux phases, puisqu'on néglige les forces capillaires). Le coefficient de proportionnalité pour la phase mouillante est noté λ_w et appelé **mobilité de la phase mouillante**.

L'équation de Buckley-Leverett s'écrit sous la forme suivante :

$$-\frac{\partial f_w}{\partial x} = \frac{A\phi}{q} \frac{\partial S_w}{\partial t} \quad \text{Eq. (5.18)}$$

Avec A l'aire de la section de la cavité mouillante, q le débit total et ϕ la porosité. f_w est défini comme la fonction appelée débit fractionné, qui est le rapport de la mobilité de la phase mouillante sur la somme des mobilités :

$$f_w(S_w) = \frac{\lambda_w}{\lambda_w + \lambda_{nw}} = \frac{\left(\frac{k_{rw}}{\mu_w}\right)}{\left(\frac{k_{rw}}{\mu_w}\right) + \left(\frac{k_{rnw}}{\mu_{nw}}\right)} \quad \text{Eq. (5.19)}$$

La résolution de cette équation hyperbolique conduit à la formation d'un front abrupt (pente infinie), qui pose de gros problèmes de stabilité numérique. Pour surmonter cette difficulté, on introduit artificiellement un coefficient de diffusion D_w qui stabilise la solution. Cette méthode a été proposée par Langtangen *et al.* [115] et appliquée par Bogdanov [116].

L'équation résolue en 1D à l'aide du logiciel Comsol Multiphysics est donc la suivante :

$$\phi \frac{\partial S_w}{\partial t} + \nabla \cdot (-D_w \nabla S_w + f_w q) = 0 \quad \text{Eq. (5.20)}$$

Le tableau suivant présente les paramètres utilisés lors de la simulation numérique. La longueur du domaine, le débit et le coefficient de diffusion sont choisis de manière à reproduire les conditions expérimentales de l'injection n°1 que nous avons décrite dans le chapitre précédent.

Paramètre	Valeur
Longueur du domaine	0,4 m
Saturation S_w en entrée	0,99
Saturation S_w en sortie	0,01
Saturation initiale	0,01
Coefficient de diffusion D_w	3.10^{-7}
Vitesse débitante q	0.25 mm.s^{-1}
Viscosité fluide mouillant μ_w	0.138 Pa.s [117]
Viscosité fluide non mouillant μ_{nw}	$1.8 \cdot 10^{-5} \text{ Pa.s}$

Tableau 1 : Paramètres utilisés pour la modélisation de l'équation de Buckley-Leverett

La Figure V- 6 présente les courbes de saturation obtenues à différents instants avec ce modèle.

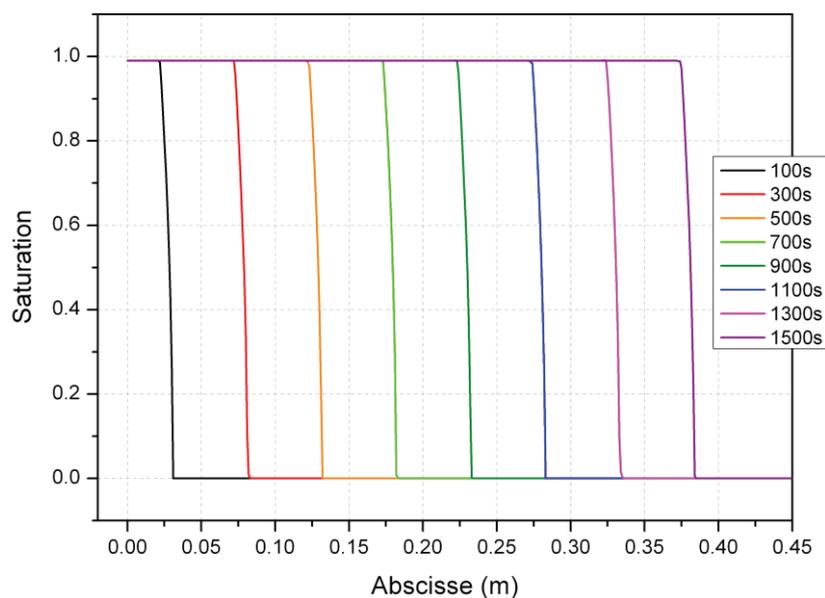


Figure V- 6 : Courbes de saturation de Buckley-Leverett à différents instants

La tracé de ces courbes permet de tirer plusieurs conclusions :

- Le coefficient de diffusion permet de stabiliser la solution et de recréer artificiellement la zone partiellement saturée.
- Le transport de la saturation est bien effectué à débit constant
- On ne constate aucune pente entre la valeur maximale de la saturation et le changement de pente. Nous avons remarqué que cet effet est dû au très fort contraste de viscosité qui existe entre le liquide et l'air (4 ordres de grandeur)

Le paragraphe suivant va s'attacher à estimer l'influence des perméabilités relatives sur la forme du profil de saturation. Pour souligner les différences entre les courbes et dans un souci de clarté de la présentation, on surestime volontairement la viscosité de l'air.

II.2 Influence des perméabilités relatives sur la courbe de saturation

Dans cette partie, l'influence des perméabilités relatives sur l'allure des courbes de saturation est étudiée. Pour cette étude, nous avons considéré le modèle de Corey, présenté dans la partie I.2.3. Les sensibilités du coefficient multiplicateur b et de l'exposant n des équations (5.5) et (5.6) sont étudiées.

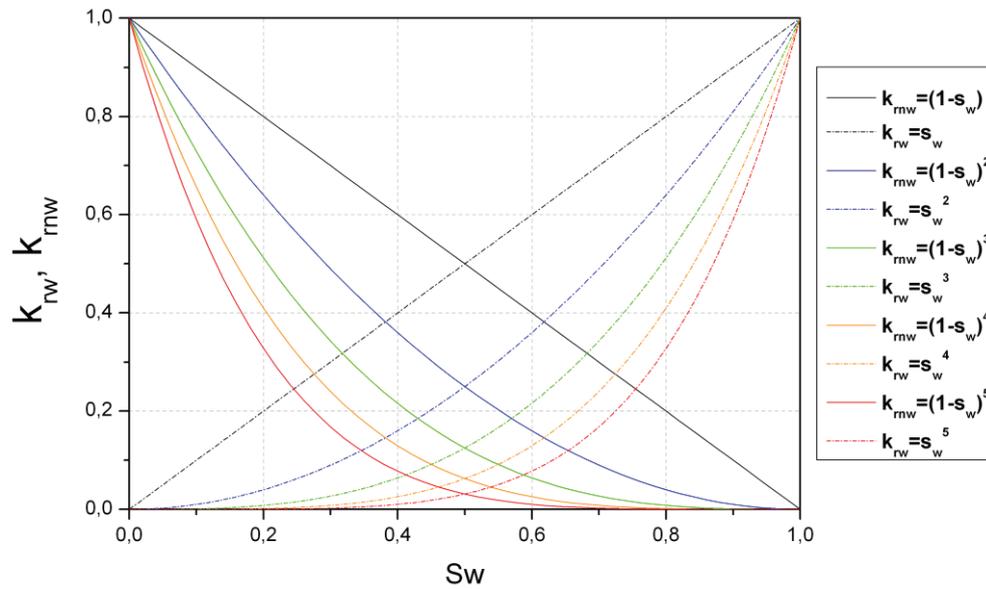


Figure V- 7 : Allure des courbes de perméabilité relative pour plusieurs valeurs de l'exposant n du modèle de Corey.

Dans un premier temps, la sensibilité de l'exposant n du modèle de Corey est examinée. La Figure V- 7 présente l'allure des courbes de perméabilités relatives pour des exposants compris entre 1 et 5. Leur influence sur les profils de saturation est représentée ci-dessous (Figure V- 8).

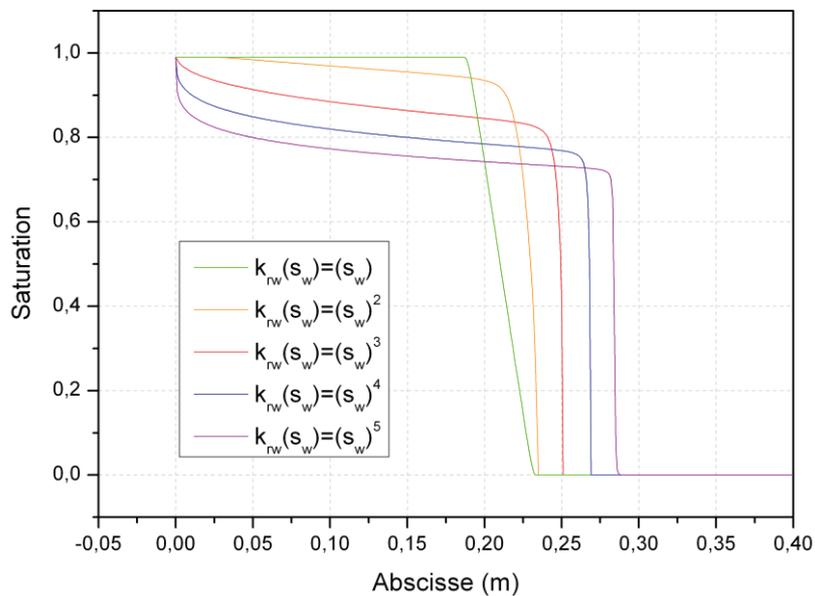


Figure V- 8 : Influence de l'exposant n du modèle de Corey sur les courbes de saturation.

On remarque que la valeur de l'exposant conduit à des profils significativement différents, qui se distinguent essentiellement pour les zones loin du front. De plus, il semble à première vue que la courbe qui se rapproche le plus des courbes de saturation expérimentales corresponde à celle obtenue pour un exposant égal à 2.

Etudions maintenant de quelle manière le coefficient multiplicateur du modèle de Corey impacte la saturation. Lorsque ce coefficient est appliqué à la perméabilité relative de la phase mouillante (Figure V- 9), le profil de saturation n'est pas significativement modifié, même si la variation de la perméabilité est conséquente. En revanche, il s'avère que la saturation est relativement sensible à la perméabilité relative de la phase non-mouillante (Figure V- 10). Comme on le remarque sur la figure, la diminution de $k_{r_{nw}}$ tend à « lisser » la saturation, et à diminuer le paramètre que nous avons appelé y_i dans le chapitre précédent.

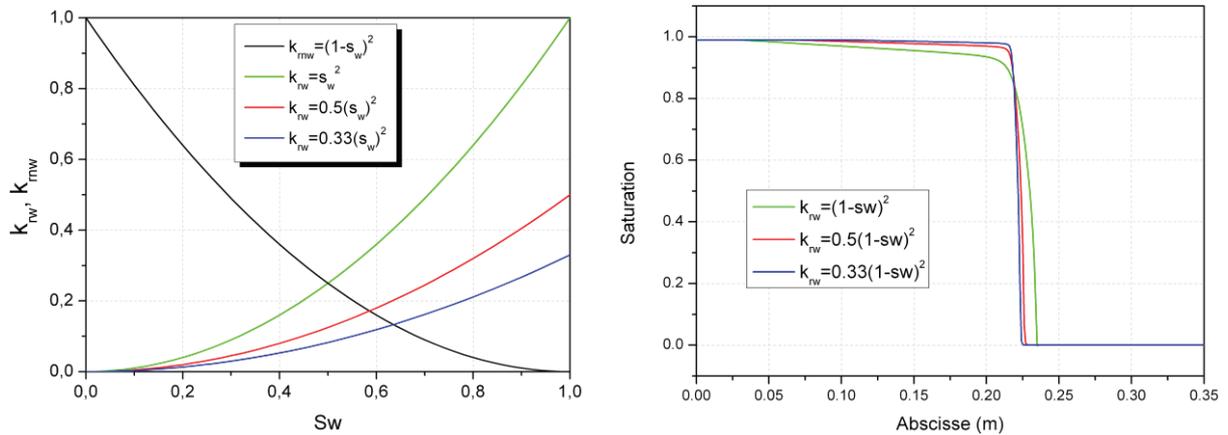


Figure V- 9 : Variation de l'exposant de la perméabilité relative au fluide mouillant k_{rw} (à gauche), et son influence sur la courbe de saturation (à droite)

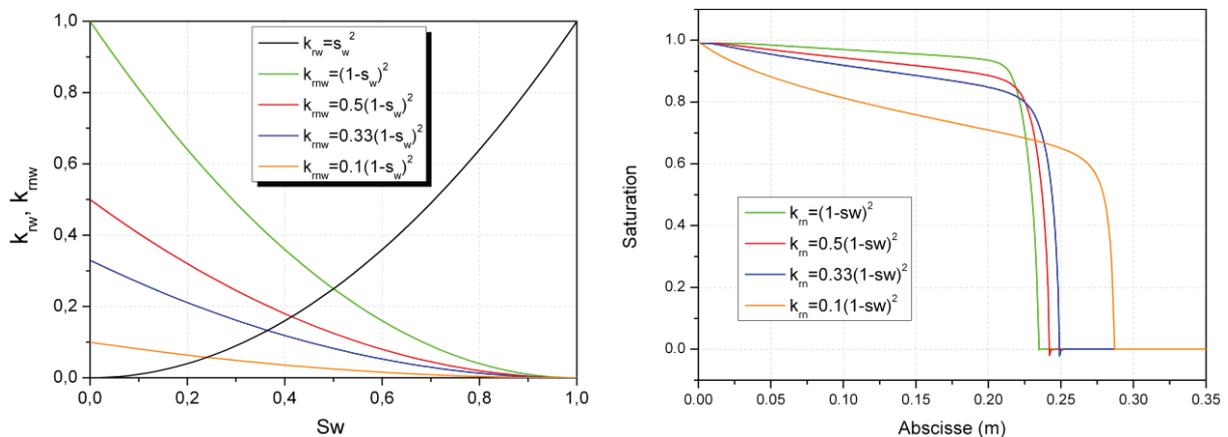


Figure V- 10 : Variation de l'exposant de la perméabilité relative au fluide non mouillant k_{rnw} (à gauche), et son influence sur la courbe de saturation (à droite)

Pour conclure, nous avons pu confirmer grâce à cette première approche la sensibilité des courbes de saturation obtenues aux perméabilités relatives. Il semble donc envisageable d'identifier ces dernières en exploitant à nouveau les données expérimentales. Un modèle couplant la pression et la saturation, dont la description est donnée dans la partie suivante est donc développé dans ce but.

III Couplage du système pression-saturation avec les transferts de chaleur

III.1 Description du système d'équations

Le système d'équations à résoudre comporte deux équations, dont les inconnues sont les champs de pression et de saturation. Le développement de ce système provient de la loi de Darcy généralisée et d'un bilan de masse sur le domaine considéré, et est décrit dans la suite.

Considérons une quantité u contenue dans un volume Ω . La variation de u est causée par les flux de frontière \vec{F} sur la frontière du domaine et à la source notée Q à l'intérieur de Ω . La loi de conservation en forme différentielle s'écrit par conséquent de la manière suivante :

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \nabla \cdot \vec{F} = Q \quad \text{Eq. (5.21)}$$

Dans notre cas, la quantité conservée est la masse par unité de volume. Ainsi, pour une phase α quelconque dans un milieu de porosité ϕ :

$$u_\alpha = \phi \rho_\alpha S_\alpha \quad \text{Eq. (5.22)}$$

Le système d'équations à résoudre est composé du bilan de masse pour la phase mouillante (Eq. (5.24)), ainsi que de la loi de Darcy généralisée (Eq. (5.24))

$$\frac{\partial(\phi \rho_w S_w)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_w \vec{u}_w) = 0 \quad \text{Eq. (5.23)}$$

$$\vec{u}_w = -\frac{k_{rw} K}{\mu_w} \nabla P_w \quad \text{Eq. (5.24)}$$

Dans la suite, on fait l'hypothèse que les phases mouillantes et non-mouillantes remplissent entièrement l'espace poreux, ce qui implique que :

$$S_w + S_{nw} = 1 \quad \text{Eq. (5.25)}$$

Par substitution de (5.24) dans (5.23), on a (les fluides sont supposés incompressibles):

$$\phi \frac{\partial S_w}{\partial t} - \nabla \cdot \left(K \frac{k_{rw}}{\mu_w} \nabla P_w \right) = 0 \quad \text{Eq. (5.26)}$$

On utilise alors la définition de la pression capillaire

$$p_c = p_{nw} - p_w \quad \text{Eq. (5.27)}$$

Ce qui implique

$$\phi \frac{\partial S_w}{\partial t} - \nabla \cdot \left(K \frac{k_{rw}}{\mu_w} \nabla P - K \frac{k_{rw}}{\mu_w} \nabla p_c \right) = 0 \quad \text{Eq. (5.28)}$$

On utilise alors la propriété suivante afin de faire apparaître la relation entre la saturation de la phase mouillante et la pression capillaire, qui peut être décrite par des corrélations empiriques que nous avons présentées dans le paragraphe I.3.3.

$$\frac{\partial p_c}{\partial x} = \frac{\partial p_c}{\partial S_w} \frac{\partial S_w}{\partial x} \quad \text{Eq. (5.29)}$$

Finalement nous obtenons l'équation relative à la saturation :

$$\phi \frac{\partial S_w}{\partial t} - \nabla \cdot \left(K \frac{k_{rw}}{\mu_w} \nabla P \right) + \nabla \cdot \left(K \frac{k_{rw}}{\mu_w} \frac{\partial p_c}{\partial S_w} \nabla S_w \right) = 0 \quad \text{Eq. (5.30)}$$

La deuxième équation relative à la pression est obtenue elle aussi par substitution, et aboutit au résultat suivant :

$$\nabla \cdot \left(K \frac{k_{rw}}{\mu_w} \frac{\partial p_c}{\partial S_w} \nabla S_w \right) - \nabla \cdot \left(K \left(\frac{k_{rw}}{\mu_w} + \frac{k_{rnw}}{\mu_{nw}} \right) \nabla P \right) = 0 \quad \text{Eq. (5.31)}$$

III.2 Estimation de la pression capillaire

La pression capillaire est supposée varier avec la saturation du fluide mouillant selon le modèle de Van Genuchten. Cependant, la valeur de la pression capillaire maximale reste inconnue. Afin de l'estimer dans les conditions expérimentales, nous utilisons l'équation (5.11) décrivant la pression capillaire dans un tube capillaire idéal. En assimilant une mèche de renfort à un ensemble de tubes capillaires, on obtient la pression capillaire maximale régnant dans les mèches.

En faisant l'hypothèse que les effets de capillarité dans les macro-canaux sont négligeables, on suppose que l'on peut estimer la pression capillaire maximale dans le composite en pondérant celle qui règne au sein des mèches par le taux de mèches contenu dans le renfort.

Le Tableau 2 présente les propriétés de mouillabilité du fluide modèle ainsi que les paramètres qui ont servi à estimer la pression capillaire dans le renfort unidirectionnel de fibres de verre.

σ	θ	r	Φ_m^c
47.4 mN.m ⁻¹ [117]	45° [117]	7.8 μm	0.70

Tableau 2 : Propriétés de mouillabilité du fluide modèle et paramètres géométriques liés au renfort

L'équation (5.11) devient donc :

$$p_{c(s=0)} = \Phi_m^c \left(\frac{2\sigma \cos \theta}{r} \right) = 0,7 \left(\frac{2 \times 47,4 \cdot 10^{-3} \times \frac{\sqrt{2}}{2}}{7,8 \cdot 10^{-6}} \right) \simeq 6015 \text{ Pa} \quad \text{Eq. (5.32)}$$

La pression capillaire maximale est donc estimée à environ 6000 Pa , ce qui semble cohérent avec les valeurs rencontrées dans la littérature, et notamment avec les résultats de Guérout [117]. Les paramètres du modèle de Van Genuchten sont donc ajustés pour satisfaire la condition $p_c(S_w = 0) = 6015 \text{ Pa}$. L'évolution de la pression capillaire que nous avons retenue est représentée sur la Figure V-11.

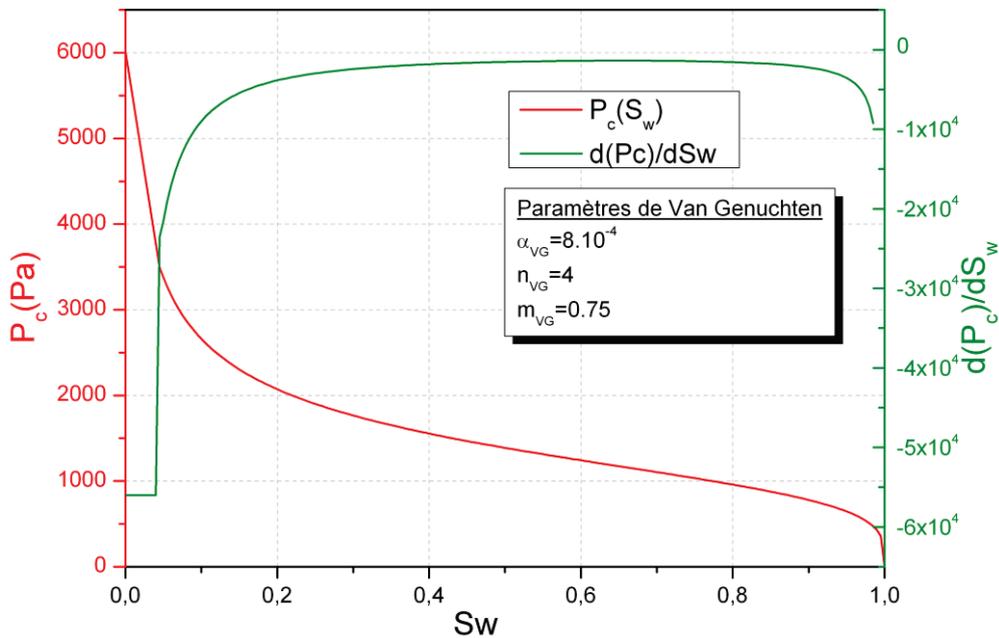


Figure V- 11 : Evolution de la pression capillaire estimée grâce au modèle de Van Genuchten. La dérivée par rapport à S_w est tracée en vert.

Notons que les courbes issues du modèle de Van Genuchten sont caractérisées par des dérivées infinies pour $S_w=0$ et $S_w=1$. Cette caractéristique conduit à d'importants problèmes numériques lors de la résolution des équations. Pour éviter l'apparition de gradients infinis, les valeurs sont « régularisées » comme le propose [118]. Concrètement, des approximations linéaires sont utilisées au voisinage des bornes (voir Figure V- 12). Cette hypothèse est raisonnable dans la mesure où pour les très faibles saturations, les modèles prédisent des valeurs de p_c infinies, ce qui n'est pas du tout physique.

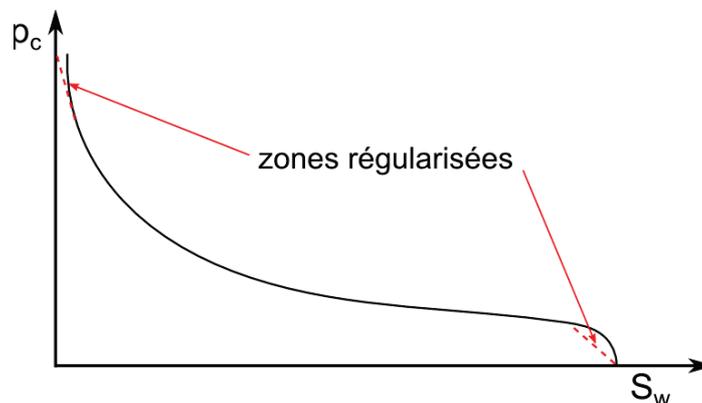


Figure V- 12 : Régularisation des courbes de pression capillaire de Van Genuchten.

La dérivée de la pression capillaire utilisée dans le système d'équations (5.30-31) est issue de l'expression analytique suivante :

$$\frac{\partial p_c}{\partial S_w} = \frac{S_w^{\left(\frac{1}{m_{VG}} - 1\right)} \left(\frac{1}{S_w^{\frac{1}{m_{VG}}} - 1}\right)^{\left(\frac{1}{n_{VG}} - 1\right)}}{\alpha_{VG} m_{VG} n_{VG}} \quad \text{Eq. (5.33)}$$

III.3 Couplage avec la thermique et identification des perméabilités relatives

L'objectif de cette partie est de parvenir à coupler le système d'équations (5.31-5.32) régissant les champs de pression et de saturation au modèle de transfert de chaleur développé dans le chapitre IV, dans le but de démontrer la faisabilité de l'identification des perméabilités relatives par le biais de la thermique. En raison de la grande instabilité numérique des équations de saturation, on choisit un couplage faible entre la saturation du fluide mouillant et les propriétés thermiques du liquide modèle. Les viscosités du modèle de saturation sont supposées indépendantes de la température.

De plus, un certain nombre d'artifices numériques sont employés pour contraindre la saturation entre 0 et 1 à chaque pas de temps. De cette manière, les instabilités numériques dues aux très fortes non-linéarités du modèle sont évitées.

La modélisation est réalisée en 2D sur la géométrie correspondant au moule instrumental présenté dans la partie IV.1 du chapitre précédent. Les conditions aux limites du modèle de conduction sont inchangées. Tel qu'il est formulé, le modèle de saturation n'admet que des conditions de pression au point d'injection. Comme les injections expérimentales ont été réalisées à débit constant, on impose une pression dépendante du temps pour garantir un écoulement à vitesse constante, dont la valeur correspond à la vitesse observée expérimentalement. Les autres conditions aux limites sont également des conditions de Dirichlet, et sont rappelées sur le schéma de la Figure V- 13.

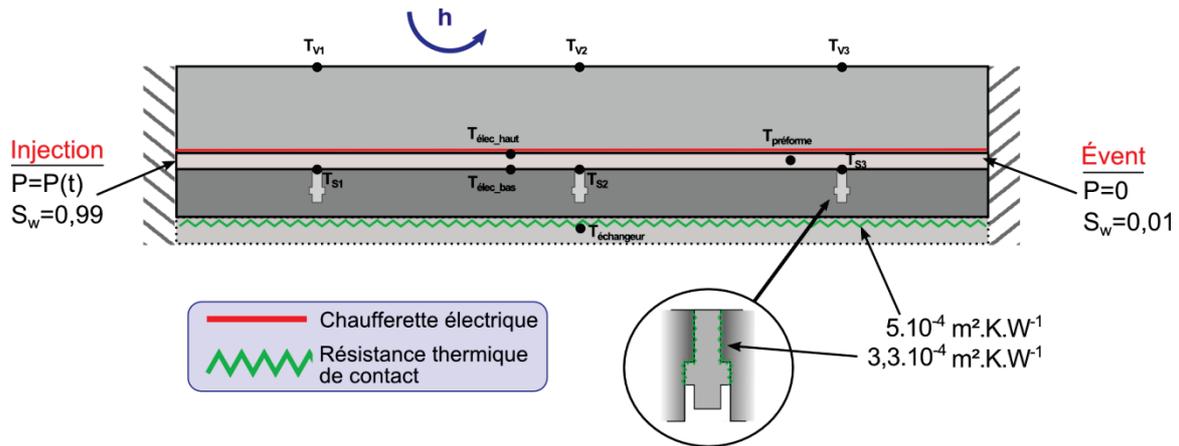


Figure V- 13 : Conditions aux limites utilisées pour le couplage thermique/pression-saturation

Les paramètres liés au modèle de saturation sont rassemblés dans le tableau suivant :

	Paramètre	Valeur
	Viscosité du fluide mouillant $\mu_w (Pa.s)$	0,138 [117]
	Viscosité du fluide non mouillant $\mu_{nw} (Pa.s)$	$1,8.10^{-5}$
	Porosité ε	0,51
Pression capillaire (Van Genuchten)	α_{VG}	8.10^{-4}
	m_{VG}	0,75
	n_{VG}	4
Perméabilités (Modèle de Corey)	Perméabilité géométrique $K (m^2)$	10^{-10} [117]
	Perméabilité relative au fluide mouillant k_{rw}	$k_{rw}(S_w) = b_w S_w^n$
	Perméabilité relative au fluide non-mouillant k_{rnw}	$k_{rnw}(S_w) = b_{nw}(1 - S_w)^n$

Tableau 3 : Paramètres du modèle de saturation utilisés pour la modélisation.

III.4 Résultats et discussion

Les perméabilités relatives sont supposées suivre le modèle de Corey (équations 5.5 et 5.6), dans lequel on estime les trois paramètres b_w , b_{nw} et n , par comparaison des flux thermiques expérimentaux et numériques à l'emplacement des trois capteurs S_1 , S_2 et S_3 . L'allure des courbes de saturation et de pression est représentée sur la Figure V- 14. La faible valeur de la pression capillaire ne permet pas d'observer de rupture de pente dans les courbes de pression, qui sont quasi-linéaires.

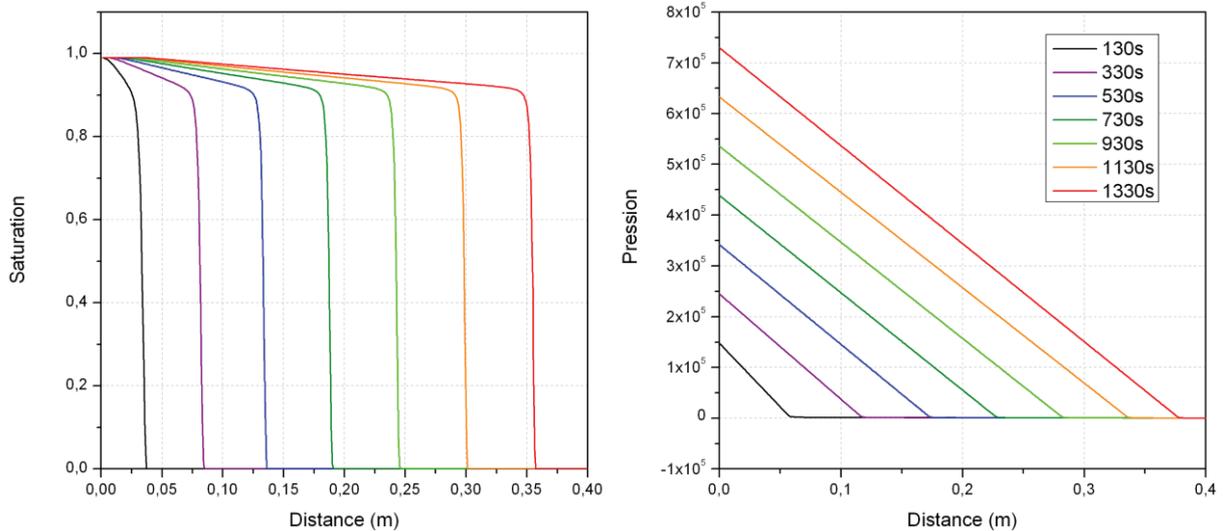


Figure V- 14 : Allure des courbes de saturation (à gauche) et des courbes de pression (à droite) à différents instants pour les perméabilités relatives estimées.

La comparaison des flux thermiques expérimentaux et numériques est présentée sur la Figure V- 15 et les courbes de perméabilité estimées sur la Figure V- 16.

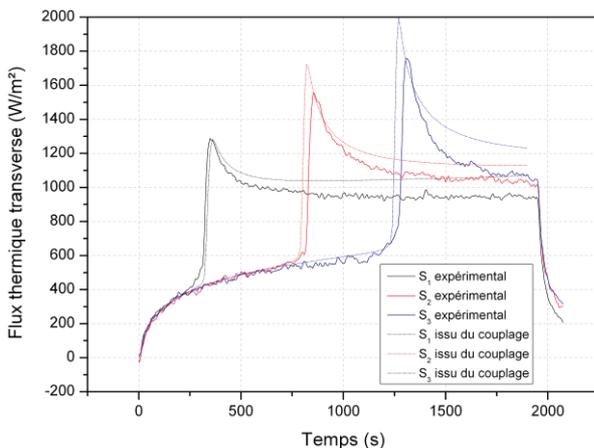


Figure V- 15 : Comparaison des flux thermiques transverses numériques et expérimentaux

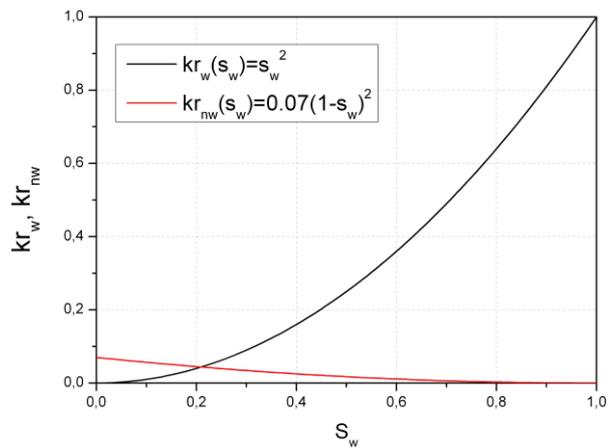


Figure V- 16 : Perméabilités relatives estimées

L'accord entre les flux numériques et l'expérience est plutôt satisfaisant, mais perfectible, et ce pour plusieurs raisons notamment:

- Dans la configuration actuelle, il n'est pas possible de recaler parfaitement l'arrivée du front devant les capteurs. En effet, dans les injections que nous avons réalisées, la forme du front change légèrement au cours du temps, en raison des hétérogénéités du renfort, ce qui implique que les temps de passage devant les capteurs ne sont pas réguliers et ne peuvent pas être prévus avec précision.
- Pour des raisons de temps de calcul, le couplage a été réalisé sur une géométrie 2D, donc en négligeant les pertes thermiques latérales que nous avons évoqué dans la partie V.2.1 du chapitre IV. Par conséquent, une dérive importante apparaît pour les temps longs.

- La pression capillaire estimée est semble-t-il sous-estimée, puisque la longueur du premier front insaturé (paramètre que nous avons appelé l) issue du couplage est estimée à environ 5 mm , contre 7 à 9 mm lors des injections expérimentales. Cette erreur a pour effet d'accentuer exagérément les pics visibles sur les courbes de flux thermique.

Remarquons par ailleurs que les courbes de perméabilité estimées sont très déséquilibrées (la valeur de la perméabilité relative à l'air est très faible), ce qui pose question sur la pertinence de l'identification, même si certains auteurs (Cunha *et al.* par exemple [119]) obtiennent des résultats expérimentaux similaires. On suppose que cet effet est dû au modèle choisi, qui par définition caractérise l'écoulement de deux fluides incompressibles. Même si l'hypothèse est acceptable pour le liquide, ce n'est absolument pas le cas pour l'air. En effet, il est établi que la deuxième pente de la courbe de saturation est due en grande partie à la compression des vides présents dans la préforme. Avec l'augmentation de la pression au cours de l'injection, les vides sont comprimés et leur volume total diminue, ce qui explique l'augmentation quasi-linéaire de la courbe de saturation vers une valeur maximale. Par conséquent, le modèle tel qu'il est présenté ne prend pas cet effet en compte, ce qui explique l'allure des courbes de saturation de la Figure V- 6. Considérer une faible valeur de la perméabilité relative à l'air n'est donc qu'un ajustement pour recréer la seconde pente de la courbe de saturation qui correspond à la compression des vides. Les travaux futurs devront s'attacher à prendre en compte la compressibilité de l'air dans les équations, afin de se rapprocher du comportement réel du matériau.

IV Conclusion partielle

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord fait quelques rappels sur les notions de base que l'on rencontre généralement dans les modélisations d'écoulements multiphasiques. Le concept de perméabilité relative a été défini, et nous avons vu l'importance de prendre en compte la pression capillaire régnant dans le milieu fibreux pour une modélisation fine de la zone partiellement saturée. Par la suite, nous avons souligné la sensibilité de la courbe de saturation aux courbes de perméabilités relatives des deux fluides. Une modélisation diphasique a été proposée, puis couplée avec les transferts de chaleur. La comparaison entre les flux thermiques issus de ce couplage et les flux expérimentaux a permis de démontrer la faisabilité de l'identification des perméabilités relatives par analyse des transferts de chaleur. Cependant, ces résultats ne représentent qu'une première approche et méritent d'être approfondis en prenant en compte la compressibilité des bulles d'air.

Références bibliographiques du chapitre V

- [106] R. D. Wyckoff and H. G. Botset, "The flow of gas-liquid mixture through unconsolidated sands," *Physics*, vol. 7, pp. 325–345, 1936.
- [107] M. Muskat, R. D. Wyckoff, H. G. Botset, and M. W. Meres, "Flow of gas-liquid mixtures through sands," *Trans. AIME Petrol.*, vol. 123, pp. 69–96, 1937.
- [108] J. Bear, *Dynamics of Fluids in Porous Media*. 1972.
- [109] A. T. Corey, "The Interrelation between Gas and Oil Relative Permeabilities," *Production Monthly*, vol. 19, no. 1, pp. 38–41, 1954.
- [110] R. H. Brooks and A. T. Corey, "Properties of porous media affecting fluid flow," *Irrigation and drainage division proc.*, vol. 92, no. 2, p. 61, 1966.
- [111] M. T. Van Genuchten, "A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils," *Soil Science Society of America*, vol. 44, no. 92, 1980.
- [112] M. Nordlund and V. Michaud, "Dynamic saturation curve measurement for resin flow in glass fibre reinforcement," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, no. 3, pp. 333–343, Mar. 2012.
- [113] K. J. Ahn, J. C. Seferis, and J. C. Berg, "Simultaneous measurements of permeability and capillary pressure of thermosetting matrices in woven fabric reinforcement," *Polymer composites*, vol. 12, no. 3, pp. 146–152, 1991.
- [114] C. R. Killins, R. F. Nielson, and J. C. Calhoun, "Capillary desaturation and imbibition in rocks," *Prod. Monthly*, vol. 18, no. 2, pp. 30–39, 1953.
- [115] H. P. Langtangen, A. Tveito, and R. Winther, "Instability of Buckley-Leverett flow in a heterogeneous medium," *Transport in Porous Media*, vol. 9, no. 3, pp. 165–185, Nov. 1992.
- [116] I. I. Bogdanov, K. El Ganaoui, and A. M. Kamp, "COMSOL 2D Simulation of Heavy Oil Recovery by Steam Assisted Gravity Drainage," 2007.
- [117] S. Guérout, "Analyse expérimentale de la saturation des milieux fibreux à double échelle de pores: application à la mise en œuvre des matériaux composites par procédé RTM," Le Havre University, France, 2012.
- [118] DuMuX Software, "DuMuX Handbook," 2013. .
- [119] C. Cunha, E. J. Bonet, and A. C. Correa, "Water Alternating Gas Injection: Laboratory Measurement and Comparison with Analytical Calculation," *Journal of Porous Media*, vol. 2, no. 2, pp. 143–151, 1999.

Conclusion générale et perspectives

L'OBJECTIF scientifique principal de ces travaux de thèse est de parvenir à quantifier le phénomène d'insaturation lors de l'imprégnation d'un renfort fibreux dans les conditions d'un procédé LCM, en exploitant les transferts de chaleur qui se déroulent pendant cette phase. Cette analyse est rendue possible via le couplage qui existe entre les propriétés thermiques du matériau fibreux et la saturation.

Après une brève introduction, nous avons dressé un état de l'art des technologies LCM. Dans ce domaine, la transposition du procédé RTM aux polymères thermoplastiques ouvre de nouvelles perspectives en terme de propriétés des pièces finales, ainsi qu'un véritable challenge pour la maîtrise de leur mise en forme avec un procédé qui ne leur était jusque-là pas associé. L'étude des transferts de chaleur pendant l'imprégnation est délicate, en raison des nombreux couplages qui existent entre les transferts de masse, de chaleur, et éventuellement les réactions chimiques qui peuvent se produire simultanément pendant cette phase. De plus, avec l'avènement des composites thermoplastiques, on tend vers des procédés plus rapides, permettant d'augmenter les cadences, ce qui rend la modélisation plus délicate encore. Au demeurant, la thermique est également essentielle, puisque la qualité des pièces produites est directement impactée par la maîtrise de ces phénomènes physico-chimiques. Le phénomène de dispersion thermique ainsi que sa mesure expérimentale ont d'ailleurs été présentés. Nous avons vu dans quelle mesure l'écoulement du fluide pouvait exhausser le tenseur de conductivité thermique, et donc modifier les transferts de chaleur. Cependant, dans cette étude, les efforts se sont concentrés sur la quantification du phénomène de saturation, c'est la raison pour laquelle une étude a permis de vérifier que les conditions opératoires utilisées dans ces travaux étaient telles qu'elles permettaient de négliger la dispersion thermique.

Le deuxième chapitre de cette étude a été dédié à la caractérisation des propriétés thermiques du matériau modèle sélectionné, et plus particulièrement du tenseur de conductivité thermique. Un panorama des méthodes de caractérisation thermique appliquées aux matériaux composites a été dressé. Nous avons pu remarquer que bon nombre de celles-ci permettaient la mesure du tenseur de conductivité thermique soit sur la préforme sèche, soit sur le matériau réticulé, mais que très peu s'adaptait au cas des composites « liquides ». De plus, dans le cas de matériaux anisotropes, il est souvent nécessaire de recourir à plusieurs dispositifs expérimentaux afin de caractériser l'ensemble des composantes du tenseur de conductivité thermique, ce qui implique un grand nombre d'essais. Par conséquent, nous avons développé un dispositif rendant possible la mesure sur des échantillons liquides, et modifié un autre afin de permettre la mesure dans la même phase et dans les autres directions. Par la suite, nous avons caractérisé les propriétés thermiques du matériau de l'étude lorsqu'il se présentait sous la forme d'une préforme sèche ($S=0$) ou d'un composite imprégné complètement saturé ($S=1$). Six méthodes de caractérisation ont été utilisées, dont les résultats ont été croisés entre eux, et comparés avec des modèles issus de la littérature. Les résultats ont montré un accord très satisfaisant avec les modèles, puisque l'écart relatif restait toujours inférieur à 5%. Néanmoins, dans le cas de l'échantillon se présentant sous la forme d'un renfort sec, des efforts doivent encore être fournis afin de rendre possible la mesure sur le dispositif de chauffelette instrumentée, en prenant en compte les résistances thermiques de contact. De la même façon, il est important d'apporter une correction au modèle employé pour la description de la conductivité de la préforme, qui ne considère pas les contacts entre fibres, et dont la prise en compte est essentielle pour bien décrire la conduction dans le milieu poreux.

Cependant, la conductivité étant une grandeur intensive, il a fallu recourir à une modélisation pour décrire la conductivité thermique transverse en fonction du taux de vide et surtout du type de vides présents dans le composite. Cette approche réalisée grâce à une double homogénéisation par développements asymptotiques a montré une cohérence avec l'approche classique des moyennes

volumiques, et a abouti à la création d'un abaque de conductivité décrivant l'ensemble des combinaisons possibles de micro-saturation (S_μ) et macro-saturation (S_M). En conséquence, nous savons désormais décrire la conductivité thermique transverse d'un échantillon en fonction de la quantité de liquide qu'il contient et de la zone où celui-ci se trouve. Notons toutefois que les limites de cette modélisation restent nombreuses, à commencer par les contacts thermiques entre mèches et entre fibres, qui ne sont pas considérés. Par ailleurs, la conductivité thermique est également sensible à la forme des vides, qui a été idéalisée dans une première approche. Cependant, en raison du relatif faible contraste de conductivité thermique entre les fibres de verre et le liquide, ces hypothèses restent raisonnables dans notre cas. La transposition à un renfort de carbone par exemple, qui est beaucoup plus conducteur, nécessiterait d'employer un autre modèle.

Ces résultats sont réutilisés dans le chapitre IV, dans lequel des essais consistant à injecter un fluide dans un renfort fibreux sont réalisées. Une revue bibliographique présentant les principaux mécanismes de formation des vides dans les procédés LCM, ainsi que les travaux ayant permis de quantifier le scalaire de saturation est présentée dans un premier temps. Par la suite, un banc expérimental instrumenté a été conçu pour rendre possible l'estimation du profil de saturation d'un renfort constitué de fibres de verre par un liquide modèle. Une modélisation simplifiée est proposée, dans laquelle la saturation est prise en compte par les variations des propriétés thermophysiques du milieu poreux. Un soin particulier a été porté à la caractérisation et à l'étalonnage de la métrologie thermique ainsi que conductimétrique. Plusieurs expériences préliminaires sur des préformes sèches, saturées, ou sur le liquide seul ont contribué à déterminer les conditions aux limites du montage. Enfin, les résultats sont présentés pour deux injections ayant été effectuées à des débits différents. En prenant en compte les pertes tridimensionnelles, un excellent accord est trouvé entre les flux thermiques expérimentaux et numériques. Leur comparaison a permis d'identifier les paramètres l , y_i et S_{\max} qui sont caractéristiques des profils de saturation. En cela, nous avons prouvé la faisabilité de la détection de la saturation par une analyse thermique. Le couplage avec la méthode conductimétrique fournit des informations équivalentes, ce qui apporte du crédit à la méthode originale que nous avons développée. Ces résultats expérimentaux préfigurent de la maîtrise des transferts de chaleur lors de la phase d'injection.

Finalement, le dernier chapitre a proposé une approche de modélisation de la cinétique de la saturation par une approche considérant deux phases fluides immiscibles. Après quelques rappels sur le concept de perméabilité relative, nous avons souligné l'importance de prendre en compte la pression capillaire dans les équations de Darcy généralisées à un écoulement diphasique. Une étude de sensibilité sur l'équation de Buckley-Leverett a montré l'influence des perméabilités relatives sur l'allure de la courbe de saturation lors d'une injection dans un milieu poreux. Enfin, nous avons utilisé un système d'équations résolvant les champs de pression et de saturation et prenant en compte la pression capillaire grâce au modèle de Van Genuchten. Ce système a été couplé avec les transferts de chaleur, ce qui a permis d'identifier les perméabilités relatives par comparaison des flux thermiques numériques et des flux mesurés par les capteurs lors des injections expérimentales. Soulignons tout de même que cette approche ne représente qu'un premier pas vers la modélisation complète d'un système diphasique, dans lequel la compressibilité de l'air doit impérativement être intégrée.

Les perspectives de cette étude s'inscrivent dans deux axes. D'un point de vue expérimental, nous avons vu que la mesure du tenseur de conductivité thermique est délicate, *a fortiori* en phase liquide et lorsqu'il s'agit d'une préforme sèche. Le dispositif de chaufferette instrumentée que nous avons présenté au cours du chapitre III nécessiterait d'être modifié pour prétendre mesurer la conductivité d'échantillons fibreux secs, ce qui constituerait *in fine* un banc expérimental susceptible de fournir les

conductivités thermiques dans toutes les directions et dans tous les états possibles. Ce système serait alors en mesure de rassembler les fonctions de plusieurs appareils de caractérisation thermique, ce qui amènerait un gain de temps conséquent. Enfin, de nouvelles expériences sur le banc instrumenté devraient être entreprises à des débits plus élevés afin de valider les profils de saturation que nous avons mesurés. De plus, il serait intéressant de répéter l'opération sur des renforts plus complexes, en tenant compte de la dispersion thermique dans l'optique de décrire avec précision les transferts de chaleur pendant l'imprégnation et donc d'aboutir à la maîtrise de l'histoire thermique de la pièce.

D'autre part, les efforts méritent d'être poursuivis en ce qui concerne la modélisation numérique. Comme nous l'avons déjà souligné, il est nécessaire de tenir compte des contacts entre mèches pour parfaire l'abaque de conductivité que nous avons développée. De plus, il serait intéressant de s'inspirer de micrographies de composites pour s'approcher de la véritable morphologie des vides que l'on peut rencontrer dans et hors des mèches. Mais surtout, les travaux entrepris dans le domaine de la modélisation de l'écoulement diphasique demandent également à être poursuivis, comme nous avons pu le voir dans le chapitre V. L'hypothèse de l'incompressibilité des fluides montre en effet ses limites et ne permet pas de reproduire fidèlement la pente de la courbe de saturation que nous avons pu observer expérimentalement, et qui asymptote vers une valeur maximale proche de $S=1$. De surcroît, cette approche est contrariée par d'importants problèmes de stabilité numérique, en raison du très fort contraste entre les viscosités des deux fluides, ainsi que de l'expression de la pression capillaire. A ce stade, deux voies semblent envisageables. La première consisterait à conserver ce schéma diphasique, et à développer un nouveau système d'équations dans lequel la loi de compressibilité de l'air serait intégrée. La seconde, quant à elle, implique d'adopter un schéma pseudo-monophasique compressible, dans lequel la saturation est prise en compte par variation d'un terme source dans une équation de conservation de la masse.

Annexe A – Homogénéisation par prise de moyenne volumique : développement des équations.

Rappelons en premier lieu les hypothèses liées à la méthode.

I Hypothèses

Dans la suite, on nommera les deux phases fluide et solide, dont les variables seront indicées respectivement s et f. La procédure d'homogénéisation de la conductivité thermique implique un certain nombre d'hypothèses :

- La phase solide est stationnaire et de porosité constante
- La densité, la chaleur spécifique et la conductivité thermique sont indépendantes de la température
- On suppose un équilibre thermique local, ce qui signifie que le fluide et le solide ont des moyennes intrinsèques de phase égales.
- Le fluide est newtonien

II Définitions générales

Il existe en réalité trois manières de définir la grandeur moyennée d'une grandeur, qui sont toutes utilisées dans les équations que nous verrons dans la suite. Soit Ψ une grandeur définie en tout point d'un VER de volume V . **La moyenne spatiale** (Eq. (A.1)) est simplement définie comme la valeur moyenne à l'intérieur du volume V . Elle est notée

$$\langle \Psi \rangle = \frac{1}{V} \int_V \Psi \, dV \quad \text{Eq. (A.1)}$$

Une deuxième définition, appelée **la moyenne de phase**, ne prend en compte que les points appartenant à une seule phase, mais moyenne toujours sur le volume V . A titre d'exemple avec la phase fluide (Eq. (A.2)).

$$\langle \Psi_f \rangle = \frac{1}{V} \int_{V_f} \Psi_f \, dV \quad \text{Eq. (A.2)}$$

V_f est la fraction de fluide dans le volume V .

La troisième et dernière définition ne prend en compte que les points appartenant à une seule phase, et moyenne leurs valeurs sur le volume occupé par la phase en question. Il s'agit **de la moyenne intrinsèque de phase** (Eq. (A.3)).

$$\langle \Psi_f \rangle^f = \frac{1}{V_f} \int_{V_f} \Psi_f dV \quad \text{Eq. (A.3)}$$

Remarquons que les moyennes de phase et moyennes intrinsèques de phase sont reliées par la porosité notée ε_f .

$$\varepsilon_f \langle \Psi_f \rangle^f = \langle \Psi_f \rangle \quad \text{Eq. (A.4)}$$

III Théorèmes

Citons également quelques hypothèses de calcul qui sont couramment employées dans le développement des équations. Ces hypothèses reviennent à se poser les questions suivantes :

- La moyenne d'une moyenne volumique est-elle la moyenne ?

Oui. Même si mathématiquement ce n'est pas rigoureusement exact, on fait la plupart du temps les hypothèses suivantes sur les moyennes de moyennes :

$$\langle \langle \Psi_f \rangle \rangle^f \simeq \langle \Psi_f \rangle \quad \text{Eq. (A.5)}$$

$$\langle \langle \Psi_f \rangle^f \rangle^f \simeq \langle \Psi_f \rangle^f \quad \text{Eq. (A.6)}$$

- La moyenne d'un gradient est-elle le gradient de la moyenne ?

Non. Le théorème de Slattery [1] définit la moyenne d'un gradient comme le gradient de la moyenne auquel on ajoute un terme lié aux effets inter faciaux.

$$\langle \nabla \Psi \rangle = \nabla \langle \Psi \rangle + \frac{1}{V} \int_{A_{sf}} \Psi \vec{n}_{fs} dA \quad \text{Eq. (A.7)}$$

Où A_{sf} est l'aire interfaciale entre le fluide et le solide au sein du VER, et \vec{n}_{fs} le vecteur unitaire normal à cette surface, dirigé du fluide vers le solide

- La moyenne d'une divergence est-elle la divergence de la moyenne ?

Non. Là encore, on utilise un théorème similaire :

$$\langle \nabla \cdot \Psi \rangle = \nabla \cdot \langle \Psi \rangle + \frac{1}{V} \int_{A_{sf}} \Psi \vec{n}_{fs} dA \quad \text{Eq. (A.8)}$$

- La moyenne d'une dérivée temporelle est-elle la dérivée de la moyenne ?

Oui. Cette propriété est représentée par la formule suivante :

$$\left\langle \frac{\partial \Psi}{\partial t} \right\rangle^f = \frac{\partial \langle \Psi \rangle^f}{\partial t} \quad \text{Eq. (A.9)}$$

IV Développement des équations

Moyennons maintenant les équations dans les deux phases. On commence par écrire les équations sous forme différentielle dans chaque phase, une équation de conduction dans la phase solide, et une équation de convection dans la phase fluide. Le système local décrivant l'évolution de la température dans le milieu poreux est le suivant :

$$(\rho C_p)_s \frac{\partial T_s}{\partial t} = \nabla \cdot (\lambda_s \nabla T_s) \quad \text{dans } \Omega_s \quad \text{Eq. (A.10)}$$

$$(\rho C_p)_f \frac{\partial T_f}{\partial t} + (\rho C_p)_f \vec{v}_f \cdot \nabla T_f = \nabla \cdot (\lambda_f \nabla T_f) \quad \text{dans } \Omega_f \quad \text{Eq. (A.11)}$$

$$T_f = T_s \quad \text{sur } A_{fs} \quad \text{Eq. (A.12)}$$

$$\vec{n}_{fs} \cdot \lambda_f \nabla T_f = \vec{n}_{fs} \cdot \lambda_s \nabla T_s \quad \text{sur } A_{fs} \quad \text{Eq. (A.13)}$$

- **Equation sur la phase solide**

On applique tout d'abord la moyenne de phase sur l'ensemble de l'équation (A.10) qui devient :

$$\left\langle (\rho C_p)_s \frac{\partial T_s}{\partial t} \right\rangle = \langle \nabla \cdot (\lambda_s \nabla T_s) \rangle \quad \text{Eq. (A.14)}$$

Par hypothèse, ρ et C_p sont constants, ce qui permet, grâce à l'équation (A.9), de réécrire le terme de gauche de l'équation ci-dessus sous la forme suivante :

$$\left\langle (\rho C_p)_s \frac{\partial T_s}{\partial t} \right\rangle = \varepsilon_s (\rho C_p)_s \frac{\partial \langle T_s \rangle^s}{\partial t} \quad \text{Eq. (A.15)}$$

En appliquant deux fois de suite le théorème de Slattery, le terme de droite de l'équation (A.14) devient :

$$\begin{aligned} \langle \nabla \cdot (\lambda_s \nabla T_s) \rangle &= \nabla \cdot \left[\varepsilon_s \lambda_s \nabla \langle T_s \rangle^s + \frac{1}{V} \lambda_s \int_{A_{fs}} \vec{n}_{fs} \tilde{T}_s \, dA \right] \\ &+ \frac{1}{V} \int_{A_{fs}} \vec{n}_{fs} (\lambda_s \nabla \langle T_s \rangle) \, dA \end{aligned} \quad \text{Eq. (A.16)}$$

L'équation générale décrivant la température de la phase solide s'obtient en combinant les équations (A.15) et (A.16).

$$\begin{aligned} \varepsilon_s (\rho C_p)_s \frac{\partial \langle T_s \rangle^s}{\partial t} &= \nabla \cdot \left[\varepsilon_s \lambda_s \nabla \langle T_s \rangle^s + \frac{1}{V} \lambda_s \int_{A_{fs}} \vec{n}_{fs} \tilde{T}_s \, dA \right] \\ &+ \frac{1}{V} \int_{A_{fs}} \vec{n}_{fs} (\lambda_s \nabla \langle T_s \rangle) \, dA \end{aligned} \quad \text{Eq. (A.17)}$$

- **Equation pour la phase fluide**

On applique maintenant la même méthode pour la phase fluide. En faisant toujours l'hypothèse que ρ et C_p sont constants, on a :

$$(\rho C_p)_f \left(\frac{\partial T_f}{\partial t} + v_f \cdot \nabla T_f \right) = \langle \nabla \cdot (\lambda_f \nabla T_f) \rangle \quad \text{Eq. (A.18)}$$

Concernant le terme de gauche de l'équation, on utilise à nouveau la propriété de la moyenne d'une dérivée temporelle (comme à l'Eq. A.15). On obtient

$$(\rho C_p)_f \left(\frac{\partial T_f}{\partial t} + v_f \cdot \nabla T_f \right) = (\rho C_p)_f \left(\varepsilon_f \frac{\partial \langle T_f \rangle^f}{\partial t} + \langle \nabla \cdot (v_f T_f) \rangle \right) \quad \text{Eq. (A.19)}$$

On utilise à nouveau le théorème de Slattery sur la moyenne d'un gradient pour décomposer la moyenne du gradient du produit $v_f \cdot T_f$

$$\langle \nabla \cdot (v_f T_f) \rangle = \nabla \cdot \langle v_f T_f \rangle + \frac{1}{V} \int_{A_{fs}} \vec{n}_{sf} (v_f T_f) \, dA \quad \text{Eq. (A.20)}$$

En partant du principe qu'il y a non glissement du fluide aux parois, la vitesse v_f est nulle sur A_{sf} . L'intégrale de l'équation (A.20) est donc négligée. En revanche, pour le premier terme de l'équation (A.20), on utilise une nouvelle propriété de la moyenne d'un produit pour aboutir à :

$$\langle \nabla \cdot (v_f T_f) \rangle = \langle v_f \rangle \cdot \nabla \langle T_f \rangle^f + \nabla \langle \tilde{v}_f \tilde{T}_f \rangle \quad \text{Eq. (A.21)}$$

On a défini au passage ce qu'on appelle les déviations spatiales. On suppose que les valeurs réelles de la température et de la vitesse en un point du VER sont égales à la somme de leurs moyenne de phase et d'une déviation spatiale nommée \tilde{T} et \tilde{v} .

$$T = \langle T \rangle^f + \tilde{T} \quad \text{Eq. (A.22)}$$

$$v = \langle v \rangle^f + \tilde{v} \quad \text{Eq. (A.23)}$$

On aboutit à deux équations moyennées, une pour chaque phase

- Phase solide

$$\begin{aligned} \varepsilon_s (\rho C_p)_s \frac{\partial \langle T_s \rangle^s}{\partial t} &= \nabla \cdot \left[\varepsilon_s \lambda_s \nabla \langle T_s \rangle^s + \frac{1}{V} \lambda_s \int_{A_{fs}} \vec{n}_{sf} \tilde{T}_s \, dA \right] \\ &+ \frac{1}{V} \int_{A_{fs}} \vec{n}_{sf} (\lambda_s \nabla \langle T_s \rangle) \, dA \end{aligned} \quad \text{Eq. (A.24)}$$

- Phase fluide

$$\begin{aligned} (\rho C_p)_f \left(\varepsilon_f \frac{\partial \langle T_f \rangle^f}{\partial t} + \langle v_f \rangle \cdot \nabla \langle T_f \rangle^f \right) &= \nabla \cdot \left[\varepsilon_f \lambda_f \nabla \langle T_f \rangle^f + \frac{1}{V} \lambda_f \int_{A_{fs}} \vec{n}_{fs} \tilde{T}_f \, dA \right] \\ &+ \frac{\lambda_f}{V} \int_{A_{fs}} \vec{n}_{fs} \nabla \langle T_f \rangle \, dA - (\rho C_p)_f \nabla \cdot \langle \tilde{v}_f \tilde{T}_f \rangle \end{aligned} \quad \text{Eq. (A.25)}$$

En utilisant l'hypothèse de l'équilibre thermique local (également appelé modèle à une température), on peut supposer que

$$\langle T_f \rangle^f = \langle T_s \rangle^s = \langle T \rangle \quad \text{Eq. (A.26)}$$

$\langle T \rangle$ représente la moyenne volumique de la température des deux phases. En supposant en plus la continuité de la température à travers l'interface solide-fluide, on a la condition suivante sur les déviations spatiales :

$$\tilde{T}_f = \tilde{T}_s \quad \text{sur } A_{fs} \quad \text{Eq. (A.27)}$$

Les équations (A.24) et (A.25) sont enfin sommées et simplifiées :

$$\begin{aligned}
 & (\rho_f C_{p_f} \varepsilon_f + \rho_s C_{p_s} \varepsilon_s) \frac{\partial \langle T \rangle}{\partial t} + (\rho C_p)_f \langle v_f \rangle \cdot \nabla \langle T \rangle \\
 & = \nabla \cdot \left[(\varepsilon_f \lambda_f + \varepsilon_s \lambda_s) \nabla \langle T \rangle + \frac{\lambda_f - \lambda_s}{V} \int_{A_{fs}} \vec{n}_{fs} \tilde{T}_f dA \right] \\
 & - (\rho C_p)_f \nabla \cdot \langle \tilde{v}_f \tilde{T}_f \rangle
 \end{aligned} \quad \text{Eq. (A.28)}$$

La fermeture du problème s'effectue en supposant que l'on peut développer \tilde{T}_f en fonction de $\nabla \langle T \rangle$ en utilisant la série de Taylor autour de zéro. On définit alors le vecteur \mathbf{b} comme le premier terme de cette série valant :

$$\tilde{T}_f = \mathbf{b} \cdot \nabla \langle T \rangle \quad \text{Eq. (A.29)}$$

L'équation (A.28) est alors ramenée à une expression fonction de ce vecteur \mathbf{b} , dans laquelle on voit apparaître les termes homogènes à une conductivité thermique.

$$\begin{aligned}
 & (\rho_f C_{p_f} \varepsilon_f + \rho_s C_{p_s} \varepsilon_s) \frac{\partial \langle T \rangle}{\partial t} + (\rho C_p)_f \langle v_f \rangle \cdot \nabla \langle T \rangle \\
 & = \nabla \cdot [(\lambda_e + \lambda_D) \nabla \langle T \rangle]
 \end{aligned} \quad \text{Eq. (A.30)}$$

$$\lambda_e = (\varepsilon_f \lambda_f + \varepsilon_s \lambda_s) + \frac{\lambda_f - \lambda_s}{V} \int_{A_{fs}} \vec{n}_{fs} \tilde{T}_f dA \quad \text{Eq. (A.31)}$$

$$\lambda_D = -\varepsilon_f \rho_f C_{p_f} \langle \tilde{v}_f \mathbf{b} \rangle^f \quad \text{Eq. (A.32)}$$

λ_e est le tenseur de conductivité effectif du composite, composé lui-même d'une composante liée à la loi des mélanges, et d'une autre liée à la géométrie du matériau, qu'on appelle la tortuosité. Lorsque le liquide est en mouvement, une contribution supplémentaire représentée par le tenseur de dispersion thermique λ_D est apportée à la conductivité thermique.

Références

- [1] J. C. Slattery, "Flow of viscoelastic fluids through porous media," *AIChE Journal*, vol. 13, no. 6, pp. 1066–1071, 1967.

Annexe B – Algorithme de Filtrage de Savitzky-Golay

L'algorithme de filtrage de Savitzky-Golay [1] a été présenté en 1964 par Abraham Savitzky et Marcel Golay. Etant chimistes, ils se trouvaient souvent face à des spectres très bruités pour lesquels les techniques simples de réduction du bruit de mesure, comme la moyenne mobile, n'étaient pas adaptés pour extraire les maxima typiques des pics spectraux. En effet, les moyennes mobiles ont tendance à aplatiser et élargir les pics, ce qui était rédhibitoire pour eux.

L'objectif principal de Savitzky et Golay était de développer un filtre capable de conserver les caractéristiques d'une courbe telles que les maximums ou minimums locaux. L'idée est d'opérer une série de régressions successives par un polynôme de faible degré sur des valeurs adjacentes.

Considérons un ensemble de n points $\{x_j, y_j\}$ décrivant une courbe bruitée. On définit ensuite un intervalle $I = \left[-\frac{(m-1)}{2}; \frac{(m-1)}{2}\right]$ ayant pour largeur m , sur laquelle nous allons faire les régressions.

On considère un polynôme (généralement de degré 2 ou 3), et pour chaque intervalle I , on effectue une régression afin de déterminer le polynôme P_i minimisant l'erreur au sens de la méthode des moindres carrés. En réalité, la méthode des moyennes glissantes est un lissage de Savitzky-Golay avec un polynôme de degré 0.

Les coefficients de la régression polynomiale sont calculés par une combinaison linéaire des points de l'intervalle glissant. La valeur lissée, et les valeurs des dérivées, sont donc elles-mêmes des combinaisons linéaires faisant intervenir des coefficients de convolution. La valeur modifiée Y_j est telle que :

$$Y_j = \sum_{i=-\frac{(m-1)}{2}}^{\frac{(m-1)}{2}} C_i y_{j+i} \quad \text{Eq. (B.1)}$$

où m est le nombre de points sur lesquels le filtrage est effectué et C_i le coefficient de convolution associé au point i .

Exemple

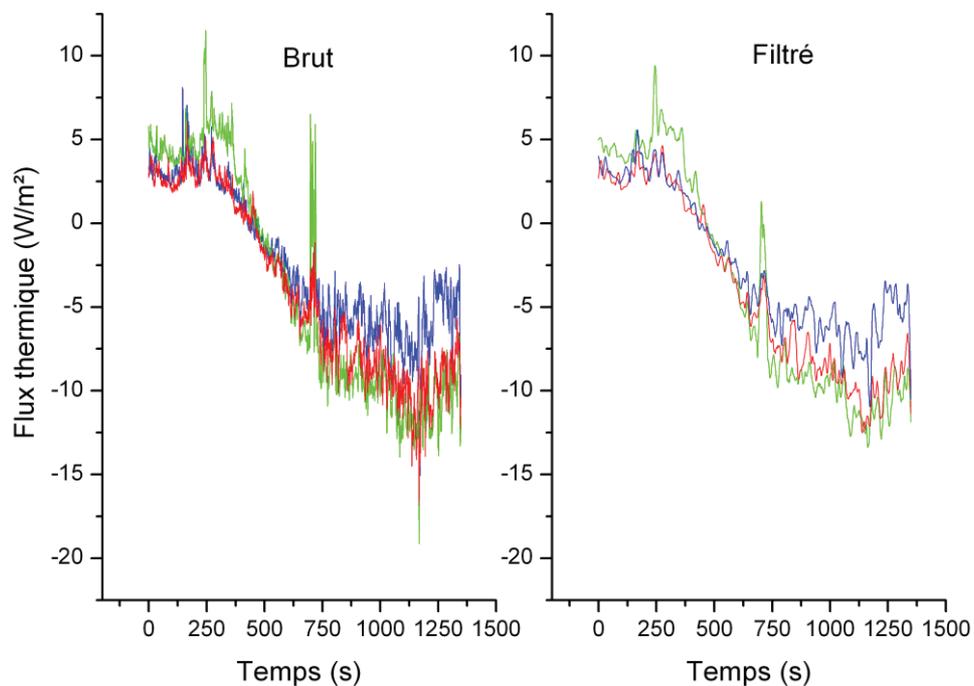
Pour cet exemple on considère une régression de degré 2 sur 5 points. L'ensemble suivant rassemble les coefficients de convolution pour ce cas.

Coefficients de convolution pour degré 2 ou 3				
$i=-2$	$i=-1$	$i=0$	$i=1$	$i=2$
$-\frac{3}{35}$	$\frac{12}{35}$	$\frac{17}{35}$	$\frac{12}{35}$	$-\frac{3}{35}$

En appliquant la formule, la $j^{\text{ième}}$ valeur lissée est définie par :

$$Y_j = \frac{-3}{35}y_{j-2} + \frac{12}{35}y_{j-1} + \frac{17}{35}y_j + \frac{12}{35}y_{j+1} - \frac{3}{35}y_{j+2} \quad \text{Eq. (B.2)}$$

La figure suivante présente un exemple d'application du filtre de Savitzky-Golay à une courbe de flux thermique.



Références

- [1] A. Savitzky and M. J. E. Golay, "Smoothing and Differentiation of Data by Simplified Least Squares Procedures," *Analytical Chemistry*, vol. 36, no. 8, pp. 1627–1639, 1964.

Annexe C – Lien entre la saturation totale et les micro- et macro-saturations

Dans cette partie, l'équation liant la saturation totale aux micro et macro saturations présentée dans le chapitre III est démontrée.

Définitions

Les deux cellules élémentaires présentées dans le chapitre III sont considérées. Dans ces cellules, on suppose que V_p est le volume total des micro-vides, et V_P celui des macro-vides. Le volume total de l'échantillon est noté V_{comp} , celui des mèches V_{meches} , et celui occupé par les fibres seules V_{fib} . Ainsi $V_{comp} - V_{fib}$ représente le volume que le liquide peut occuper au maximum.

La micro-saturation est définie comme le complémentaire du taux de vide microscopique :

$$S_\mu = 1 - \text{taux de vides micro} = 1 - \frac{V_p}{V_{meches} (1 - \Phi_f^m)} \quad \text{Eq. (C.1)}$$

De la même manière, la macro-saturation est le complémentaire du taux de vide macroscopique :

$$S_M = 1 - \text{taux de vides macro} = 1 - \frac{V_P}{V_{comp} (1 - \Phi_m^c)} \quad \text{Eq. (C.2)}$$

Développement des équations

Commençons par écrire l'expression du taux de vide total dans la pièce. Il est défini comme la somme des micro-vides et des macro-vides divisé par le volume total qu'ils pourraient occuper au maximum, c'est dire le volume du fluide.

$$\text{taux de vide total} = \frac{V_p + V_P}{V_{comp} - V_{fib}} \quad \text{Eq. (C.3)}$$

On décompose ensuite les termes selon l'échelle considérée, et on multiplie par des facteurs particuliers dans le but de faire apparaître S_M et S_μ .

$$\begin{aligned} \text{taux de vides total} &= \frac{V_p}{V_{comp} - V_{fib}} \left(\frac{V_{meches} (1 - \Phi_f^m)}{V_{meches} (1 - \Phi_f^m)} \right) \\ &+ \frac{V_P}{V_{comp} - V_{fib}} \left(\frac{V_{comp} (1 - \Phi_m^c)}{V_{comp} (1 - \Phi_m^c)} \right) \end{aligned} \quad \text{Eq. (C.4)}$$

Par réarrangement (les expressions en bleu font apparaître S_M et S_μ .)

$$\begin{aligned}
 & \text{taux de vides total} \\
 &= \frac{V_p}{V_{meches} (1 - \Phi_f^m)} \left(\frac{V_{meches} (1 - \Phi_f^m)}{V_{comp} - V_{fib}} \right) \\
 &+ \frac{V_P}{V_{comp} (1 - \Phi_m^c)} \left(\frac{V_{comp} (1 - \Phi_m^c)}{V_{comp} - V_{fib}} \right)
 \end{aligned} \tag{C.5}$$

Soit

$$\begin{aligned}
 & \text{taux de vides total} \\
 &= (1 - S_\mu) \left(\frac{V_{meches} (1 - \Phi_f^m)}{V_{comp} - V_{fib}} \right) \\
 &+ (1 - S_M) \left(\frac{V_{comp} (1 - \Phi_m^c)}{V_{comp} - V_{fib}} \right)
 \end{aligned} \tag{C.6}$$

Le développement et le réarrangement de l'équation (C.6) aboutit à :

$$\begin{aligned}
 & \text{taux de vides total} \\
 &= \frac{V_{meches} (1 - \Phi_f^m) + V_{comp} (1 - \Phi_m^c)}{V_{comp} - V_{fib}} \\
 &- \left[\frac{V_{meches} (1 - \Phi_f^m)}{V_{comp} - V_{fib}} \right] S_\mu - \left[\frac{V_{comp} (1 - \Phi_m^c)}{V_{comp} - V_{fib}} \right] S_M
 \end{aligned} \tag{C.7}$$

On remarque que le premier terme de l'équation (C.7) vaut 1. D'autre part, on exprime les termes de volume restants en fonction de Φ_f^m , Φ_m^c et Φ_f^c .

$$\frac{V_{meches}}{V_{comp} - V_{fib}} = \frac{\Phi_m^c}{1 - \Phi_f^m \cdot \Phi_m^c} = \frac{\Phi_m^c}{1 - \Phi_f^c} \tag{C.8}$$

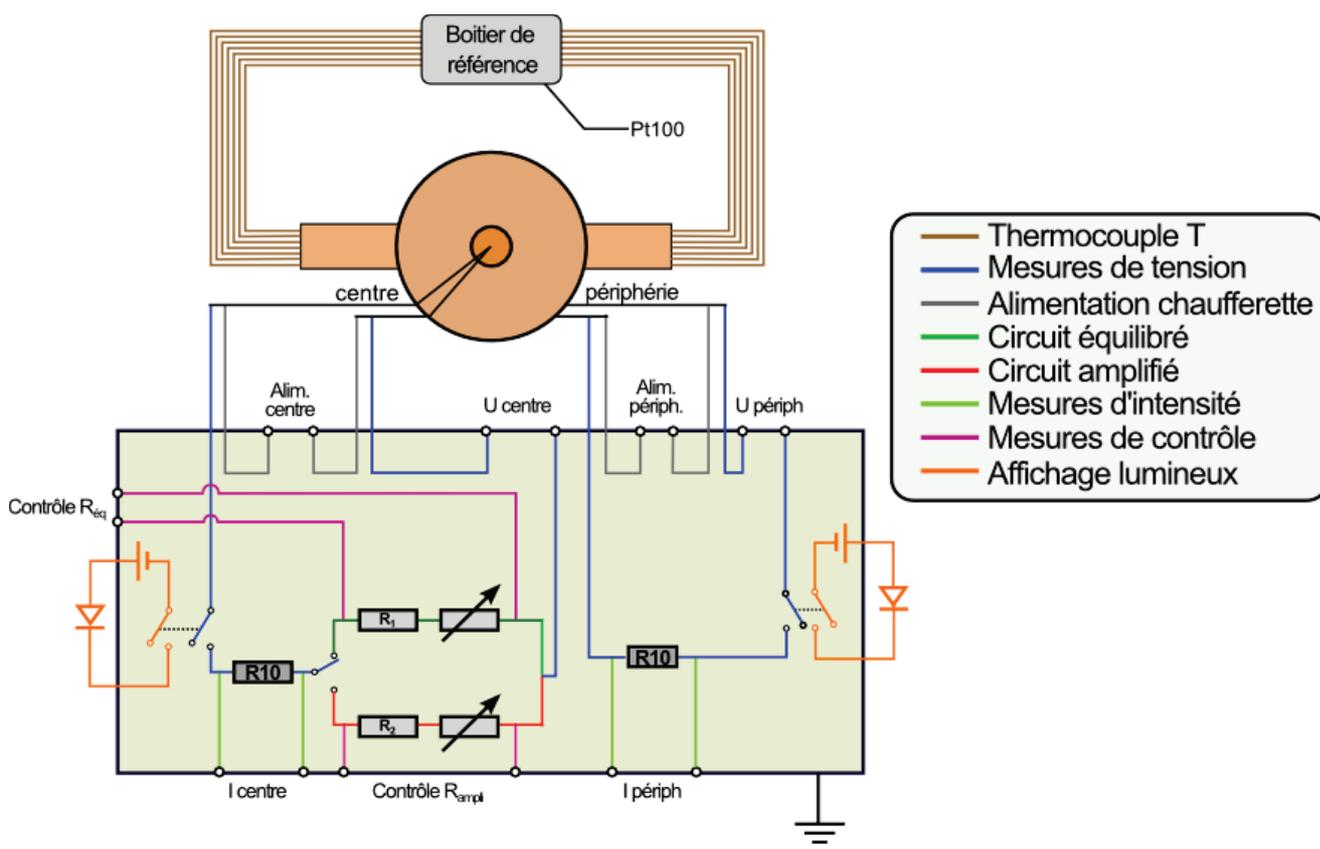
$$\frac{V_{comp}}{V_{comp} - V_{fib}} = \frac{1}{1 - \Phi_f^c} \tag{C.9}$$

Finalement, la saturation totale est exprimée comme le complémentaire du taux de vide total et amène à :

$$S_T(S_\mu, S_M) = 1 - \text{taux de vides total} = \left(\frac{\Phi_m^c - \Phi_f^c}{1 - \Phi_f^c} \right) S_\mu + \left(\frac{1 - \Phi_m^c}{1 - \Phi_f^c} \right) S_M \tag{C.10}$$

Cette expression n'est fonction que de Φ_m^c , le taux de mèches dans le composite, et Φ_f^c , le taux de fibres dans le composite. Ces deux paramètres sont imposés par la géométrie.

Annexe D – Schéma électrique de la méthode de la chaufferette instrumentée



Annexe E – Calcul d'incertitudes composées

La norme de calcul des incertitudes a changé ces dernières années. Il faut désormais se référer à la norme NF ENV 13005 appelée « Guide for evaluation of Uncertainty Measurement » (GUM) [1]. Tous les calculs d'incertitudes de cette thèse ont été réalisés à partir de celle-ci. Cette annexe présente un exemple simple permettant de comprendre comment estimer l'incertitude lorsque le processus de mesure est modélisable par une équation.

I Notions de base

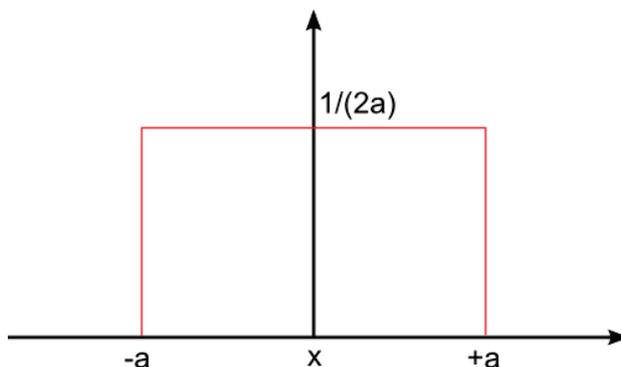
Il existe en réalité deux types d'incertitudes :

- **L'incertitude de type A (ou incertitude de répétabilité)** : c'est le cas où l'opérateur se place dans les conditions de répétabilité pour réaliser une série de mesures répétées (exemple : plusieurs pesées successives par un même opérateur). Dans ce cas, la moyenne arithmétique est la meilleure estimation de la grandeur, et l'incertitude-type associée est définie comme le rapport de l'écart-type sur le nombre de mesures

$$u_A = \frac{s}{\sqrt{n}} \quad \text{Eq. (E.1)}$$

u_A est l'incertitude de type A, s l'écart-type et n le nombre de mesures.

- **L'incertitude de type B** : ces incertitudes sont associées à l'erreur intrinsèque de l'instrument de mesure, et sont estimées à partir de l'information disponible, tel que les spécifications du fabricant, ou des certificats d'étalonnage. Ces informations fournissent la valeur de l'erreur maximale que l'on peut commettre. Il faut ensuite recourir à des lois de probabilités pour obtenir l'expression de l'incertitude de type B sous forme d'un écart-type.



La plupart du temps, on utilise une distribution rectangulaire, ou uniforme, telle que représentée sur la figure XX. L'erreur est de $\pm a$ autour de la valeur x avec une probabilité constante. Dans ce cas l'incertitude de type B est donnée par l'équation :

$$u_B = \frac{a}{\sqrt{3}} \quad \text{Eq. (E.2)}$$

II Exemple

Dans la suite, on suppose que l'on veut déterminer l'incertitude liée à la mesure d'un taux volumique de fibres de verre dans un composite. Le protocole est le suivant :

- une préforme contenant plusieurs plis, de côté a et d'épaisseur e est découpée puis pesée.
- La pesée est répétée plusieurs fois
- On calcule enfin le taux volumique de fibres grâce à la valeur de la masse volumique du verre.

Les erreurs peuvent donc provenir :

- de la mesure de l'épaisseur e et du côté a
- de la pesée
- des valeurs de la masse volumique du verre trouvée dans la littérature

II.1 Incertitude liée à la pesée

II.1.1 Incertitude de répétabilité

La pesée a été répétée 3 fois dans les conditions de répétabilité. Les résultats donnent :

$$M_1 = 131.025 \text{ g}$$

$$M_2 = 131.026 \text{ g}$$

$$M_3 = 131.025 \text{ g}$$

Soit une incertitude de type A associée :

$$u_{A_{\text{pesée}}} = \frac{s}{\sqrt{n}} = 3.331 \cdot 10^{-4} \text{ g} \quad \text{Eq. (E.3)}$$

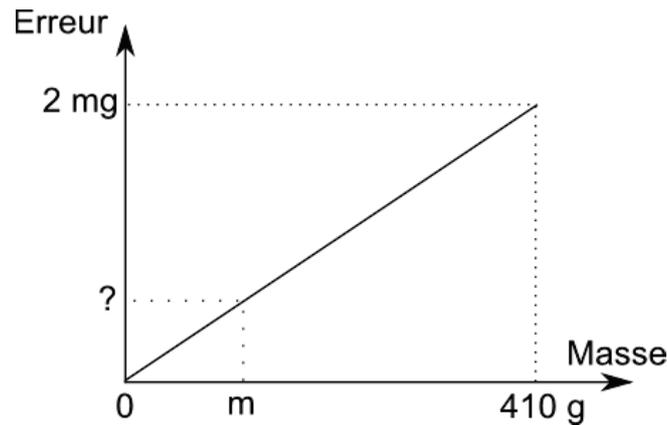
II.1.2 Incertitude liée à la balance

Les données du fabricant de la balance de précision Obhaus Pioneer PA413C sont rassemblées dans le tableau suivant.

Précision d'affichage (mg)	Linéarité (mg)	Reproductibilité (mg)	Capacité (g)
0,001	2	1	410

Tableau 1 : Données fabricant de la balance

L'erreur due à la linéarité est représentée sur la figure suivante.



L'erreur maximale de 2mg est obtenue pour la capacité maximale de la balance (410g). Il suffit donc de trouver l'image de la masse moyenne par la fonction linéaire correspondante. L'erreur obtenue est :

$$E_{\text{linéarité}} = \left(\frac{2 \cdot 10^{-3}}{410} \bar{m} \right) = 6.390 \cdot 10^{-4} g \quad \text{Eq. (E.4)}$$

L'incertitude selon une distribution rectangulaire vaut alors :

$$u_{\text{linéarité}} = \frac{E_{\text{linéarité}}}{\sqrt{3}} = 3.689 \cdot 10^{-4} g \quad \text{Eq. (E.5)}$$

De la même manière, l'incertitude liée à la précision d'affichage vaut :

$$u_{\text{affichage}} = \frac{E_{\text{affichage}}}{\sqrt{3}} = 5.773 \cdot 10^{-4} g \quad \text{Eq. (E.6)}$$

L'incertitude type B composée est définie comme la racine carrée de la somme des carrés des incertitudes.

$$u_{B_{\text{pesée}}} = \sqrt{u_{\text{linéarité}}^2 + u_{\text{affichage}}^2} = 6.851 \cdot 10^{-4} g \quad \text{Eq. (E.7)}$$

L'incertitude totale sur la pesée est obtenue en sommant incertitudes de type A et B :

$$u_{\text{pesée}} = \sqrt{u_{A_{\text{pesée}}}^2 + u_{B_{\text{pesée}}}^2} = 7.618 \cdot 10^{-4} g \quad \text{Eq. (E.8)}$$

II.2 Incertitude liée à la mesure de l'épaisseur

Nous avons mesuré l'épaisseur de chaque coin de la garde contenant la préforme. Les résultats suivants sont obtenus.

mesure 1	mesure 2	mesure 3	mesure 4
9,10 mm	9,09 mm	9,20 mm	9,18 mm

Tableau 2 : Mesures de l'épaisseur de la préforme

On constate une erreur maximale de 0,05mm autour de la valeur moyenne. L'incertitude liée à la mesure de l'épaisseur est donc :

$$u_{\text{épaisseur}} = \frac{0,05}{\sqrt{3}} = 2.887.10^{-2}mm \quad \text{Eq. (E.9)}$$

II.3 Incertitude liée à la découpe de la préforme

On estime que les découpes de la préforme sont précises à 2mm. L'erreur maximale est donc de 1 mm, et l'incertitude associée est donc :

$$u_{\text{côté}} = \frac{1}{\sqrt{3}} = 0.577 \text{ mm} \quad \text{Eq. (E.10)}$$

II.4 Incertitude liée à la masse volumique du verre

Les valeurs extrêmes que nous trouvons dans la littérature sont comprises entre 2550 et 2620 kg.m⁻³. Nous avons donc une valeur moyenne de 2585 kg.m⁻³ avec une erreur maximale de 35 kg.m⁻³, ce qui donne l'incertitude suivante :

$$u_{\text{rho}} = \frac{35}{\sqrt{3}} = 20.207 \text{ kg.m}^{-3} \quad \text{Eq. (E.11)}$$

L'équation utilisée pour la mesure du taux volumique de fibres est donnée par :

$$\%v = \frac{V_{\text{verre}}}{V_{\text{total}}} = \frac{m_{\text{préforme}}}{\rho_{\text{verre}} a^2 e} \quad \text{Eq. (E.12)}$$

où a est la mesure du côté de la préforme et e son épaisseur.

Dans le cas de mesures non corrélées (c'est notre cas ici), on peut écrire **la loi de propagation des incertitudes** [2] de la manière suivante :

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^p \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i) \quad \text{Eq. (E.13)}$$

où l'incertitude composée u_c est exprimée en fonction des dérivées partielles $\frac{\partial f}{\partial x_i}$ de chaque paramètre qui sont les coefficients de sensibilité, et p est le nombre de paramètres.

Finalement, on obtient :

$$\left(\frac{u_{\%v}}{\%v}\right) = \sqrt{2 \left(\frac{u_{\text{côté}}}{a}\right)^2 + \left(\frac{u_{\rho}}{\rho}\right)^2 + \left(\frac{u_{\text{épaisseur}}}{e}\right)^2 + \left(\frac{u_{\text{pesée}}}{m_{\text{préforme}}}\right)^2} \quad \text{Eq. (E.14)}$$

L'application numérique permet de comparer l'influence de chaque source d'erreur (correspondant à chaque terme en couleur sur l'équation (E.14)).

Importance			
1	Incertitude sur la masse volumique	$\left(\frac{u_{\rho}}{\rho}\right)^2$	$6,11 \cdot 10^{-5}$
2	Incertitude sur la mesure du côté	$2 \left(\frac{u_{\text{côté}}}{a}\right)^2$	$3,26 \cdot 10^{-5}$
3	Incertitude sur la mesure de l'épaisseur	$\left(\frac{u_{\text{épaisseur}}}{e}\right)^2$	$1,01 \cdot 10^{-5}$
4	Incertitude sur la pesée	$\left(\frac{u_{\text{pesée}}}{m_{\text{préforme}}}\right)^2$	$3,38 \cdot 10^{-11}$

On constate que l'incertitude sur la pesée est négligeable, la balance utilisée est donc adaptée. La plus grande incertitude est liée à la masse volumique du verre qui est choisie dans la littérature.

Enfin, l'incertitude composée sur le taux volumique de fibres dans ce cas idéal est estimée à :

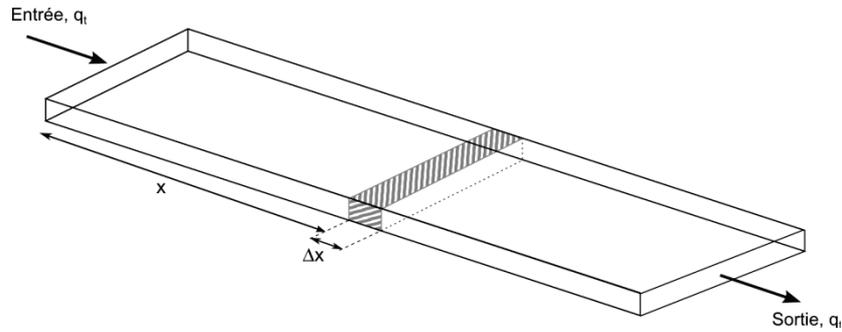
$$\left(\frac{u_{\%v}}{\%v}\right) = 0,499 \% \quad \text{Eq. (E.15)}$$

Références

- [1] Norme NF ENV 13005, *Guide for evaluation of uncertainty Measurement*. 1999.
- [2] B. Bourniquel and B. Courant, "Cours de Métrologie-évaluation de l'incertitude de mesure," *Université de Nantes*, 2012.

Annexe F – Modèle de Buckley-Leverett

L'équation de Buckley et Leverett est basée sur le principe de conservation de la masse pour l'écoulement 1D d'un fluide à travers un milieu poreux, et à débit constant. Considérons un milieu poreux linéaire (voir la figure ci-dessous), et appliquons sur celui-ci un bilan de masse sur la tranche d'épaisseur Δx et pendant la durée Δt .



$$\left[\text{Volume de liquide} \right]_{\text{arrivant pendant } \Delta t} - \left[\text{Volume de liquide} \right]_{\text{partant pendant } \Delta t} = \left[\text{Accumulation de liquide} \right]_{\text{dans l'élément } \Delta x} \quad \text{Eq. (F.1)}$$

$$[(q_w \rho_w)_x - (q_w \rho_w)_{x+\Delta x}] \Delta t = A \Delta x \phi [(S_w \rho_w)^{t+\Delta t} - (S_w \rho_w)^t] \quad \text{Eq. (F.2)}$$

où A est la section de la cavité moulante et ϕ la porosité. En faisant tendre Δt et Δx vers 0, on a :

$$-\frac{\partial}{\partial x} (q_w \rho_w) = A \phi \frac{\partial}{\partial t} (S_w \rho_w) \quad \text{Eq. (F.3)}$$

En faisant l'hypothèse que le fluide est incompressible, on suppose :

$$\rho_w = \text{constante} \quad \text{Eq. (F.4)}$$

On introduit alors les concepts de mobilité de phase et de débit fractionné (fractional flow). La mobilité de phase notée λ est définie comme le rapport de sa perméabilité relative sur sa viscosité. Elle représente l'aptitude de la phase à s'écouler à travers le milieu poreux. La mobilité d'une phase α quelconque s'écrit :

$$\lambda_\alpha = \frac{k_{r\alpha}}{\mu_\alpha} \quad \text{Eq. (F.5)}$$

La mobilité totale est la somme des mobilités de chaque phase. Le débit fractionné de la phase mouillante est défini comme le rapport de la mobilité de la phase mouillante sur la mobilité totale :

$$f_w(S_w) = \frac{\lambda_w}{\lambda_w + \lambda_{nw}} = \frac{\left(\frac{k_{rw}}{\mu_w}\right)}{\left(\frac{k_{rw}}{\mu_w}\right) + \left(\frac{k_{rnw}}{\mu_{nw}}\right)} \quad \text{Eq. (F.6)}$$

Par ailleurs, le débit de la phase mouillante est relié au débit total par la relation :

$$q_w = f_w q \quad \text{Eq. (F.7)}$$

Comme le débit fractionné f_w est fonction de la saturation S_w , on peut enfin écrire l'équation de Buckley et Leverett [1]:

$$-\frac{df_w}{dS_w} \frac{\partial S_w}{\partial x} = \frac{A\phi}{q} \frac{\partial S_w}{\partial t} \quad \text{Eq. (F.8)}$$

Références

- [1] S. E. Buckley and Leverett M.C., "Mechanism of fluid displacement in sands," *Trans. AIME Petrol.*, vol. 142, pp. 107–116, 1946.

Index alphabétique des références bibliographiques

“Isolation thermique - détermination de la résistance thermique et des propriétés connexes en régime stationnaire - méthode de la plaque chaude gardée.” *ISO 8302:1991*.

Abramowitz, M., and Stegun I.A. 1972. *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*. 9th print.

Ahn, K.J., J.C. Seferis, and J.C. Berg. 1991. “Simultaneous measurements of permeability and capillary pressure of thermosetting matrices in woven fabric reinforcement.” *Polymer composites* 12(3): 146–152.

Angström, A.J. 1863. “A new method of determining the thermal conductivity of bodies.” *Philosophical Magazine* 25: 130–142.

Bachmat, Y., and J. Bear. 1986. “Macroscopic modelling of transport phenomena in porous media. Part 1: the continuum approach.” *Transport in Porous Media* 1: 213–240.

Bascom, W.D. D., and J.B. B. Romans. 1968. “Microvoids in glass-resin composites: their origin and effect on composite strength.” *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev* 7(3): 172–178.

Bauer, R., and E.U. Schlünder. 1978. “Effective radial thermal conductivity of packing in gas flow.” *Int. Chem. Eng.* 18: 181–188.

Bear, J. 1972. *Dynamics of Fluids in Porous Media*.

Beck, J.V. 1985. *Inverse heat conduction*. ed. John Wiley and Sons.

Bentoumi, R. 2013. “Conférence à la Journée Nationale des Composites, Nantes.” *PSA Peugeot Citroën*.

Berreur, L., B. De Maillard, and S. Nöspenger. 2002. “L’industrie française des matériaux composites.” *Etude stratégique pour le compte de la DIGITIP*.

Binétruy, Christophe. 2006. “Physique du moulage des composites avancés: applications.” *Techniques de l’Ingénieur* am3719.

Bogdanov, I.I., K. El Ganaoui, and A.M. Kamp. 2007. “COMSOL 2D Simulation of Heavy Oil Recovery by Steam Assisted Gravity Drainage.” In Pau.

Bréard, Joël, Abdelghani Saouab, and Guy Bouquet. 2003. “Numerical simulation of void formation in LCM.” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 34(6): 517–523.

Bréard, Joël, Y. Henzel, François Trochu, and R. Gauvin. 2003. “Analysis of dynamic flows through porous media. Part I: Comparison between saturated and unsaturated flows in fibrous reinforcements.” *Polymer composites* 24(3): 391–408.

Brooks, R.H., and A.T. Corey. 1966. “Properties of porous media affecting fluid flow.” *Irrigation and drainage division proc.* 92(2): 61.

Chan, A.W., and R.J. Morgan. 1993. “Tow impregnation during resin transfer molding of bi-directional nonwoven fabrics.” *Polymer composites* 14(4): 335–340.

Chawla, K.K. 1998. *Composite materials: science and engineering*. ed. Springer.

Corey, A.T. 1954. “The Interrelation between Gas and Oil Relative Permeabilities.” *Production Monthly* 19(1): 38–41.

Crapiste, G.H., E. Rotstein, and S Whitaker. 1986. “A general closure scheme for the method of volume averaging.” *Chemical Engineering Science* 41(2): 227–235.

C. Cunha, E. J. Bonet, and A. C. Correa, “Water Alternating Gas Injection: Laboratory Measurement and Comparison with Analytical Calculation,” *Journal of Porous Media*, vol. 2, no. 2, pp. 143–151, 1999.

Da Silveira, O.T. 2001. “Dispersion thermique en milieu poreux périodique: une étude numérique.” IPRJ Nova Friburgo.

Degiovanni, A., J.C. Batsale, and D. Maillet. 1996. “Mesure de la diffusivité longitudinale de matériaux anisotropes.” *Revue générale de Thermique* 35: 141–147.

Degiovanni, Alain. 1994. “Conductivité et diffusivité thermique des solides.” *Techniques de l’Ingénieur* R2850: 1–15.

Dimoplon, W. 1972. “Estimating specific-heat of liquid mixtures.” *Chemical Engineering Journal* 79: 64–66.

Donaldson, A.B., and R.E. Taylor. 1975. “Thermal diffusivity measurement by a radial heat flow method.” *Journal of Applied Physics* 46(4584).

Dubot, F., and N. Boyard. 2011. *Application de la théorie de l’homogénéisation pour le calcul de la dispersion thermique lors de l’écoulement d’un fluide dans un milieu poreux périodique*.

DuMuX Software. 2013. “DuMuX Handbook.” Regularized Van Genuchten.

- Eyglunent, Bernard.** 1994. *Thermique théorique et pratique: à l'usage de l'ingénieur.* Hermes Sci.
- García, J A, Gascón Ll, E Ruiz, F Lebel, F Trochu, and Ll Gascón.** 2012. "Simulation and experimental validation of the saturation in LCM processes." In *FPCM 11*, Auckland, NZ, p. 127–135.
- García, J. a., Ll. Gascón, F. Chinesta, E. Ruiz, and F. Trochu.** 2010. "An efficient solver of the saturation equation in liquid composite molding processes." *International Journal of Material Forming* 3(S2): 1295–1302.
- Gokce, Ali, and Suresh G. Advani.** 2004. "Simultaneous gate and vent location optimization in liquid composite molding processes." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 35(12): 1419–1432.
- Gornet, Laurent.** 2008. "Généralités sur les matériaux composites."
- Grufman, C., and F Ellyin.** 2007. "Determining a representative volume element capturing the morphology of fibre reinforced polymer composites." *Composites Science and Technology* 67: 766–775.
- Guéroult, Sébastien, Laurent Bizet, and Joël Bréard.** 2012. "Experimental determination of void formation and transport in the RTM process." In *FPCM 11*, Auckland, NZ, p. 111–118.
- Guéroult, Sébastien.** 2012. "Analyse expérimentale de la saturation des milieux fibreux à double échelle de pores: application à la mise en œuvre des matériaux composites par procédé RTM." Le Havre University, France.
- Gunn, D.J., and J.F.C. De Souza.** 1974. "Heat transfer and axial dispersion in packed beds." *Chemical Engineering Science* 29: 1363–1371.
- Gustafsson, S.E.** 1990. "Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials." *Review of Scientific Instruments* 62(3): 797.
- Gustavsson, M., E. Karawacki, and S.E. Gustafsson.** 1994. "Thermal conductivity, thermal diffusivity and specific heat of thin samples from transient measurement with Hot Disk sensors." *Review of Scientific Instruments* 65(12): 3856.
- Gutowski, T.G.** 1997. *Advanced composites manufacturing.* ed. Wiley.
- Hasselman, D.P.H., K.Y. Donaldson, and J.R. Thomas.** 1993. "Effective thermal conductivity of uniaxial composite with cylindrically orthotropic carbon fibers and interfacial barrier." 27(6): 637–644.
- Hayward, J.S., and B. Harris.** 1990. "The effect of vacuum assistance in resin transfer moulding." *Composites manufacturing* 1(3): 161–166.
- K. Hsiao, H. Laudorn, and S. G. Advani,** "Experimental Investigation of Heat Dispersion Due to Impregnation of Viscous Fluids in Heated Fibrous Porous During," *Journal of Heat Transfer*, vol. 123, pp. 178–187, 2001.
- Jarny, Y., and P. Guillemet.** 2001. "Estimation simultanée de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique de matériaux orthotropes." In *Congrès SFT*, , p. 609–614.
- Kanit, C., S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury, and D. Jeulin.** 2003. "Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach." *International Journal of Solids and Structures* 40: 3647–3679.
- Kaviany, M.** 1995. *Principles of Heat Transfer in Porous Media.* Mechanical.
- Killins, C.R., R.F. Nielson, and J.C. Calhoun.** 1953. "Capillary desaturation and imbibition in rocks." *Prod. Monthly* 18(2): 30–39.
- Kramers, H., and G. Alberda.** 1953. "Frequency response analysis of continuous flow systems." *Chemical Engineering Science* 2: 173–181.
- Kulkarni, M. R., and R P Brady.** 1997. "A model of global thermal conductivity in laminated carbon/carbon composites." 57: 277–285.
- Labat, Ludovic, Michel Grisel, Joël Breard, and Guy Bouquet.** 2001. "Original use of electrical conductivity for void detection due to injection conditions of composite materials." *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIB - Mechanics* 329(7): 529–534.
- Langtangen, Hans Petter, Aslak Tveito, and Ragnar Winther.** 1992. "Instability of Buckley-Leverett flow in a heterogeneous medium." *Transport in Porous Media* 9(3): 165–185.
- Lebel, François, Amir Ershad A.E. Fanaei, E Ruiz, François Trochu, and Édu Ruiz.** 2012. "Prediction of optimal flow front velocity to minimize void formation in dual scale fibrous reinforcements." *International Journal of Material Forming.*
- Leclerc, Jean Sébastien, and Edu Ruiz.** 2008. "Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 39(12): 1859–1868.
- Lecoïnte, Damien.** 1999. "Caractérisation et simulation des processus de transferts lors d'injection de résine pour le procédé RTM." Nantes University.
- Levec, J., and R.G. Carbonell.** 1985. "Longitudinal and lateral thermal dispersion in packed beds." *AIChE Journal* 31: 581–602.
- Lundstrom, T.S., B.R. Gebart, and C.Y. Lundemo.** 1993. "Void formation in RTM." *Journal of reinforced Plastics and Composites* 12(12): 1339–1349.

- Mallick, P.K.** 2008. *Fiber-reinforced composites: materials, manufacturing and design*. ed. CRC Press.
- Maranzana, Gaël, Isabelle Perry, and Denis Maillet.** 2004. "Mini- and micro-channels: influence of axial conduction in the walls." *International Journal of Heat and Mass Transfer* 47(17-18): 3993–4004.
- Matine, A., N. Boyard, P. Cartraud, G. Legrain, and Y. Jarny.** 2013. "Modeling of thermophysical properties in heterogeneous periodic media according to a multi-scale approach: Effective conductivity tensor and edge effects." *International Journal of Heat and Mass Transfer* 62: 586–603.
- Maxwell, J.C.** "A Treatise on Electricity and Magnetism." In *3rd edition*.
- Menczel, J.D., and R.B. Prime.** 2009. *Thermal analysis of polymers: Fundamentals and Applications*. ed. Wiley.
- Metzger, T., S. Didierjean, and Maillet D.** 2004. "Optimal experimental estimation of thermal dispersion coefficients in porous media." *International Journal of Heat and Mass Transfer* 47(14-16): 3341–3353.
- Miller, A., and A.G. Gibson.** 1996. "Impregnation techniques for thermoplastic matrix composites." *Polymers and Polymer Composites* 4(7): 459–481.
- Moyne, C.** 2000. "Thermal dispersion in porous media: one-equation model." *International Journal of Heat and Mass Transfer* 43(20): 3853–3867.
- Muskat, M., R.D. Wyckoff, H.G. Botset, and M.W. Meres.** 1937. "Flow of gas-liquid mixtures through sands." *Trans. AIME Petrol.* 123: 69–96.
- Nielsen, L.E.** 1973. "Thermal conductivity of particulate-filled polymers." *Journal of Applied Polymer Science* 17(12): 3819–3820.
- Nordlund, Markus, and Véronique Michaud.** 2012. "Dynamic saturation curve measurement for resin flow in glass fibre reinforcement." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 43(3): 333–343.
- Nunes dos Santos, Wilson, Jorge Nicolau dos Santos, Paul Mummery, and Andrew Wallwork.** 2010. "Thermal diffusivity of polymers by modified angström method." *Polymer Testing* 29(1): 107–112.
- Özgümüş, T, M Mobedi, Ü Özkol, and A Nakayama.** 2011. "Thermal Dispersion in Porous Media – A Review on Approaches in Experimental Studies." *International Advanced Technologies Symposium*: 266–271.
- Pal, R.** 2008. "On the Lewis–Nielsen model for thermal/electrical conductivity of composites." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 39(5): 718–726.
- Park, Chung Hae, Aurélie Lebel, Abdelghani Saouab, Joël Bréard, and Woo Il Lee.** 2011. "Modeling and simulation of voids and saturation in liquid composite molding processes." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 42(6): 658–668.
- Parker, W.J., R.J. Jenkins, C.P. Butler, and G.L. Abbott.** 1961. "Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity." *Journal of Applied Physics* 32(9).
- Parton, Hilde, and Ignaas Verpoest.** "In situ polymerization of thermoplastic composites based on cyclic oligomers." *Polymer composites* 26(1): 60–65.
- Parton, Hilde.** 2006. "Characterisation of the in-situ polymerisation production process for continuous fibre reinforced thermoplastics."
- Patel, N., V. Rohatgi, and L. James Lee.** 1995. "Micro scale flow behavior and void formation mechanism during impregnation through a unidirectional stitched fiberglass mat." *Polymer engineering and science* 35(10): 837–851.
- Patel, Nirajkumar, and L. James Lee.** 1996. "Modeling of void formation and removal in liquid composite molding. Part II: Model development and implementation." *Polymer composites* 17(1): 104–114.
- Patel, Nirajkumar.** 1994. "Micro-scale flow behavior, fiber wetting and void formation in liquid composite molding." Ohio State University.
- Pillai, Krishna M., and Suresh G. Advani.** 1998. "A model for unsaturated flow in woven fiber preforms during mold filling in resin transfer molding." *Journal of composite materials* 32(19): 1753–1783.
- Progelhof, R.C., J.L. Throne, and R.R. Ruetsch.** 1976. "Methods for predicting the Thermal Conductivity of Composite Systems: A Review." *Polymer engineering and science* 16.
- Quintard, M, and S Whitaker.** 1997. "Two-medium treatment of heat transfer in porous media: numerical results for effective properties." *Science* 20.
- Quintard, M., and S Whitaker.** 1993. "Transport in ordered and disordered porous media: volume averaged equations, closure problems and comparisons with experiments." *Chemical Engineering Science* 48: 2537–2564.
- Ravey, C, F Lebel, E Ruiz, Courteau-Godmaire H., and F Trochu.** 2013. "Void minimization and optimization of injection velocity in RTM processing." In *19th International conference on composite materials*, Montréal, p. 4214–4223.
- Ravey, Christophe, Édu Ruiz, and François Trochu.** 2013. "Determination of the optimal injection velocity in resin transfer molding by infrared thermography." In *19th International conference on composite materials*, Montréal, p. 4174–4183.

- Rayleigh**. 1882. "On the influence of obstacles arranged in rectangular order upon the properties of a medium." *Philosophical Magazine* 34: 481.
- Rolfes, R., and U Hammerschmidt**. 1995. "Transverse thermal conductivity of CFRP laminates: A numerical and experimental validation of approximation formulae." *Composites Science and Technology* 54(1): 45–54..
- Rolla, Luigi, and Giorgio Piccardi**. "International Critical Tables of Numerical Data, Physics, Chemistry and Technology." 196: 116.
- Rolland, J.Y.** 2011. *Etude de faisabilité d'un changement de configuration expérimental*. Nantes.
- Ruiz, E, F Lebel, and F Trochu**. 2012. "Experimental study of capillary flows, voids formation and void migration in LCM manufacturing." In *FPCM 11*, Auckland, NZ, p. 136–143.
- Ruiz, E, V Achim, S Soukane, F Trochu, and J Breard**. 2006. "Optimization of injection flow rate to minimize micro/macro-voids formation in resin transfer molded composites." *Composites Science and Technology* 66(3-4): 475–486. (November 8, 2011).
- Samet, N., P. Maréchal, and H. Duflo**. 2011. "Ultrasound monitoring of bubble size and velocity in a fluid model using phased array transducer." *Independent Nondestructive Testing and Evaluation* 44(7): 621–627.
- Sanchez-Palencia, E**. 1980. *Non-homogeneous media and vibration theory*. ed. Springer-Verlag.
- Seto, Daigo, Ryosuke Matsuzaki, Akira Todoroki, and Yoshihiro Mizutani**. 2011. "Void formation in an anisotropic woven fiber during resin transfer molding." In *ICCM 18*, Jeju Island, Korea, p. 1–5.
- Société Française de Thermique**. 2005. "Sft-Airbus France seminar: Thermal characterization of monolithic composite materials, modeling- characterization-round robin test."
- Springer, George S, Ann Arbor, and Stephen W Tsai**. 1967. "Unidirectional Materials." 1: 166–173.
- Tavman I.H.** 1998. "Effective thermal conductivity of isotropic polymer composites." *Science* 25(5): 723–732.
- Thomas, M., N. Boyard, N Lefevre, Y. Jarny, D. Delaunay, and N. Lefèvre**. 2010. "An experimental device for the simultaneous estimation of the thermal conductivity 3-D tensor and the specific heat of orthotropic composite materials." *International Journal of Heat and Mass Transfer* 53(23-24): 5487–5498.
- Thomas, Matthieu**. 2008. 125–164 "Propriétés thermiques de matériaux composites: caractérisation expérimentale et approche microstructurale." Université de Nantes.
- Trias, D., J. Costa, B. Fiedler, T. Hobbiebrunken, and J.E. Hurtado**. 2006. "A two-scale method for matrix cracking probability in fibre-reinforced composites based on a statistical representative volume element." *Composites Science and Technology* 66(11-12): 1766–1777.
- Tsai, Stephen W, and J.C. Halpin**. 1967. "Environmental factors in composite materials design." *Air force materials laboratory*.
- Tsotsas, E**. 1990. *Fortschrittberichte Über die Wärme- und Stoffübertragung in durchströmten Festbetten*. Düsseldorf.
- Tucker, C.L., and R.B. Dessenberger**. 1992. "Governing equations for flow and heat transfer in stationary fiber beds." *Flow and Rheology in Polymer Composites Manufacturing*.
- Van Genuchten, M.T.** 1980. "A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils." *Soil Science Society of America* 44(92).
- Van Rijswijk, K, and H Bersee**. 2007. "Reactive processing of textile fiber-reinforced thermoplastic composites – An overview." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 38(3): 666–681.
- Villière Maxime, Damien Lecoïnte, Vincent Sobotka, Nicolas Boyard, and Didier Delaunay**. 2012. "Experimental determination and modeling of thermal conductivity tensor of carbon/epoxy composite." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 46: 60–68.
- Wakeman, M.D., and C.D. Rudd**. 2000. "Compression Molding of Thermoplastic Composites." *Comprehensive Composite Materials* 2: 915–963.
- Washburn, E.W.** 1926. "International Critical Tables of Numerical Data, Physics, Chemistry and technology." 3414.
- Wen, D., and Y. Ding**. 2006. "Heat transfer of gas flow through a packed bed." *Chemical Engineering Journal* 61: 3532–3542.
- Wyckoff, R.D., and H.G. Botset**. 1936. "The flow of gas-liquid mixture through unconsolidated sands." *Physics* 7: 325–345.
- Yagi, S., D. Kunii, and N. Wakao**. 1960. "Studies on axial effective thermal conductivities in packed beds." *AIChE Journal* 6: 543–546.
- Yenilmez, Bekir, and E. Murat Sozer**. 2009. "A grid of dielectric sensors to monitor mold filling and resin cure in resin transfer molding." *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 40(4): 476–489.
- Ziegmann, G**. 1991. "Processing of fibre composites-a comparison of thermoplastics and thermosets." *Verbundwerk*.

Thèse de Doctorat – Maxime Villière

Université Nantes-Angers-Le Mans

« Analyse des transferts de chaleur couplés à la saturation pendant l'imprégnation d'un renfort fibreux : application aux procédés LCM »

Résumé

Les industries du transport, en particulier les industries automobile et aéronautique, font face plus que jamais à une problématique d'économie d'énergie, qui passe nécessairement par un allègement des structures.

Dans ce contexte, les matériaux composites semblent être des candidats idéaux, en raison de l'exceptionnel compromis masse/performance qu'ils présentent. Les procédés LCM (Liquid Composite Molding) et plus particulièrement RTM (Resin Transfer Molding) sont très utilisés pour produire des pièces structurelles complexes de hautes performances.

La qualité des pièces ainsi produites dépend fortement de la phase d'imprégnation des renforts fibreux, durant laquelle l'écoulement de la résine induit la création d'une zone non-saturée, provoquant par conséquent la formation de porosités qui affectent les propriétés mécaniques.

Les travaux présentés dans cette thèse s'attachent à détecter et à quantifier la saturation du renfort par le biais d'une analyse des transferts de chaleur. Dans un premier temps, le tenseur de conductivité thermique d'un matériau modèle a été caractérisé à l'aide d'un large panel de dispositifs expérimentaux. Une méthode d'homogénéisation a été mise en place afin de prédire les propriétés thermiques du composite en fonction de la nature des vides rencontrés. Par la suite, un banc expérimental doté d'une métrologie thermique adaptée est conçu, permettant l'imprégnation d'un renfort par un fluide modèle. L'identification de la saturation est rendue possible par un modèle simplifié d'écoulement. Enfin, une approche par modélisation diphasique est proposée, démontrant la faisabilité de l'identification des perméabilités relatives de chacune des phases par la thermique.

Mots clés

Saturation – Transferts de chaleur - Matériaux composite – LCM – Milieu poreux

Abstract

Transportation industries, especially aeronautics and automotive industries, are facing more than ever energy-saving issues, which imply weight reduction of structures.

Within this context, composite materials appear to be appropriate candidates, due to their outstanding "strength to weight" ratio. Liquid Composite Molding (LCM) and particularly Resin Transfer Molding (RTM) are becoming increasingly important for a wide range of industrial applications involving complex structural parts.

The quality of LCM products strongly depends on the impregnation of the fiber preform during the mold-filling stage. During this step, a partially-saturated zone emerges in the flow, and induces consequently the formation of porosities, which drastically affect mechanical performances.

This study presents an original approach in which heat transfers are used to quantify the saturation profile. In a first step, the effective thermal conductivity of a model composite material have been measured by several methods. A homogenization methodology based on asymptotic expansion has been performed at dual-scale in order to predict the thermal properties of the composite as a function of saturation. Several heat flux sensors and thermocouples were integrated in an experimental bench, which allows the injection of a model fluid into a textile preform. Finally, an alternative numerical approach is proposed by modeling a multi-phase flow, proving the feasibility of identifying the relative permeabilities of each phase through thermal analysis.

Key Words

Saturation – Heat Transfer – Composite Materials – LCM – Porous Media