



### **Science Arts & Métiers (SAM)**

is an open access repository that collects the work of Arts et Métiers Institute of Technology researchers and makes it freely available over the web where possible.

This is an author-deposited version published in: <https://sam.ensam.eu>  
Handle ID: <http://hdl.handle.net/10985/6609>

#### **To cite this version :**

Azita AHMADI-SENICHAULT, Gérard VIGNOLES, Viguen AYVAZYAN, Olivier CATY, Grégory BRESSON, Maria Luisa GREGORI, Sônia FONSECA COSTA - Transferts thermiques 3D dans des composites silice – phénolique: méthodes thermographiques et tomographiques - In: Congrès français de thermique, France, 2012 - Congrès français de thermique - 2012

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository

Administrator : [scienceouverte@ensam.eu](mailto:scienceouverte@ensam.eu)



# Transferts thermiques 3D dans des composites silice – phénolique: méthodes thermographiques et tomographiques

Azita AHMADI-SENICHAULT<sup>1,\*</sup>, Gérard L.VIGNOLES<sup>2</sup>, Viguen AYVAZYAN<sup>1</sup>, Olivier CATY<sup>2</sup>, Grégory BRESSON<sup>1,2</sup>, Maria Luisa GREGORI<sup>3</sup>, Sônia FONSECA COSTA<sup>3</sup>

<sup>1</sup>I2M, Université Bordeaux, Arts et Métiers ParisTech, CNRS, Talence

<sup>2</sup>LCTS, Université Bordeaux, CNRS, Safran, CEA, Pessac

<sup>3</sup>CTA/IAE, S. José dos Campos, SP, Brazil

\*(auteure correspondante : azita.ahmadi-senichault@bordeaux.ensam.fr)

## 1. Introduction

Les véhicules aéronautiques et spatiaux comportent de nombreuses pièces en matériaux composites. Le dimensionnement thermique de ces matériaux est crucial vis-à-vis de leur application. En effet, la présence de très forts gradients thermiques lors de l'utilisation pose des problèmes technologiques comme la résistance aux chocs thermiques ou à l'ablation.

De plus, certains procédés de fabrication font également appel à des gradients de température importants, d'où la nécessité de connaître l'évolution des propriétés thermiques au cours de la fabrication.

Nous présentons ici le développement d'une approche double pour la caractérisation thermique des matériaux composites. Il s'agit d'une part de la caractérisation thermique et structurale aussi complète que possible et d'autre part, de l'estimation des propriétés thermiques sur la base d'une approche « changement d'échelle » en partant de la connaissance des propriétés des constituants élémentaires (fibre, matrice) et de leur arrangement spatial.

L'objectif du développement parallèle de ces méthodes est de contribuer à la création d'un « outil de design de matériaux » qui peut prédire l'influence de l'architecture du renfort fibreux sur certaines propriétés du composite (ici, la conductivité thermique). Nous présentons quelques résultats préliminaires de l'application de ces méthodes sur des composites silice-phénoliques envisagés pour la fabrication de pièces pour un système de protection thermique d'objets spatiaux [1,2]. Les deux approches sont développées en parallèle ; nous les présentons d'abord, ainsi que les matériaux étudiés ; ensuite, leurs résultats respectifs sont comparés.

La méthodologie développée est appliquée à des composites silice-phénolique. Ces matériaux sont destinés à la réalisation de bouclier thermique pour la rentrée atmosphérique et doivent supporter de très grandes températures et de contraintes mécaniques tout en protégeant la charge utile. Ce sont des matériaux ablatifs, qui sont irréversiblement dégradés par la rentrée, mais dont la dégradation est lente et contrôlée, de façon que la mission de protection soit remplie.

Afin de réduire le délaminage par cisaillement inter laminaire lors de la rentrée atmosphérique, de nouvelles architectures internes des renforts fibreux sont en étude[1]. Deux plaques de silice phénolique ayant une structure interne très différente sont considérées ici (Fig. 1). L'une admet un tissage régulier, alors que la deuxième plaque est un « patchwork » de coupons de dimension 2 cm × 2 cm disposés aléatoirement. Elle présente donc une structure irrégulière et une non-continuité des fibres d'un bout à l'autre de l'échantillon. Nous

tenterons notamment de comprendre l'influence de l'irrégularité de la structure de renforts sur les propriétés thermiques de la plaque.

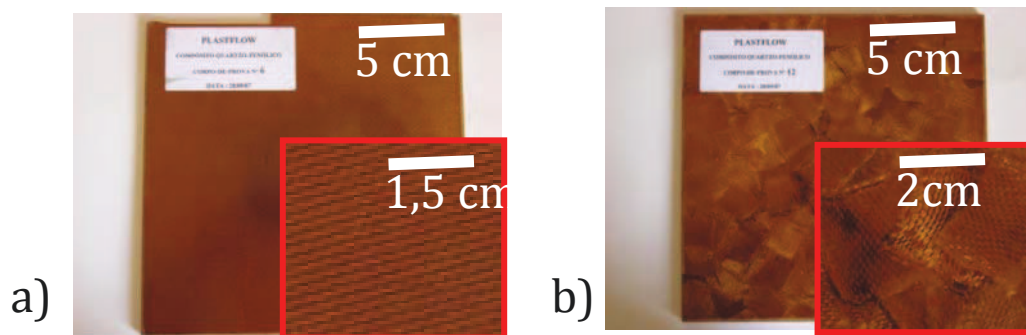


Figure 1 : a) Plaque régulière, b) Plaque « irrégulière »

Les deux plaques ont été fabriquées par thermoformage. Des fibres de silice pré-imprégnées de résine phénolique ont été placées dans un moule et cuites à 175°C sous 70 bars.

## 2. Partie expérimentale

### 2.1. Caractérisation des constituants

Les propriétés des constituants séparés sont regroupées au tableau 1.

	<i>Fibre</i>	<i>Matrice</i>	<i>Méthode d'obtention</i>
Densité ultime (kg/m <sup>3</sup> )	2210±10	1230±10	Pycnométrie He
Capacité calorifique (J/kg/K)	750±80	1650±100	DSC/Plaque chaude (matrice) Différence composite-matrice (fibre)
Diffusivité thermique (mm <sup>2</sup> /s)	0,9±0.05	1,25±0.05	Flash (matrice) Thermographie laser (fibres)
Conductivité thermique (W/m/K)	1,5±0.1	0,17±0.05	Plaque chaude Calcul

Tableau 1. Propriétés élémentaires des constituants.

La capacité calorifique de la fibre a été obtenue par déduction en utilisant les valeurs mesurées pour les composites et pour la matrice seule et en appliquant la loi des mélanges. La diffusivité thermique des constituants élémentaires a été obtenue pour la matrice par un procédé flash « classique » (thermogramme face arrière et méthode d'interprétation de Parker [3]). Pour la fibre, une méthode spécifique d'excitation laser a été mise au point. Cette caractérisation porte sur une mèche entière, recouverte de peinture noire pour augmenter son absorptivité. Celle-ci est excitée quasi-ponctuellement par un laser de 30 mW, avec un profil temporel en échelon (fonction de Heaviside). La réponse thermique est suivie par une caméra IR à 25 Hz de fréquence d'acquisition. Une procédure de traitement d'images a été mise au point : (i) sélection d'un extrait 1D dans l'image totale correspondant à la mèche seule, (ii) lissage temporel du signal, (iii) tracé du logarithme de l'excès local de température en fonction du carré de la distance au centre du spot laser et identification du coefficient de diffusion de la chaleur le long de la mèche. La modélisation 1D du transfert de chaleur dans la mèche, tenant compte de l'apport quasi-ponctuel et continu de puissance au spot et de la dissipation quasi-linéaire de chaleur en tout autre point de la mèche fait apparaître trois grandeurs : la capacité calorifique de la mèche  $\rho_{cp}$ , sa diffusivité thermique  $\alpha$ , et un coefficient effectif de transfert thermique  $h$ . La résolution du problème de transfert a été faite de façon analytique grâce à la transformation de Laplace et son inverse ; le résultat est :

$$T(x,t)-T_0 = f_{\rho_{cp},\alpha,h}(t) \exp(-x^2/4\alpha t) \quad (1)$$

Ainsi voit-on qu'il est possible d'identifier  $\alpha$  sans s'intéresser aux deux autres quantités en portant  $\ln(T-T_0)$  en fonction de  $x^2$  à différents temps.

## 2.2. Caractérisation des composites

L'analyse des taux des différentes phases est présentée au tableau 2 ci-joint. Elle s'appuie sur les données du Tableau 1, sur les valeurs obtenues par porosimétrie au mercure (porosité ouverte, densité squelettale, densité apparente) et par analyse d'images 3D (tomographies X) et 2D (micrographies des fils).

<b>Quantité</b>	<b>Comp. régulier</b>	<b>Comp. irrégulier</b>	<b>Méthode d'obtention</b>
Densité squelettale (kg/m <sup>3</sup> )	1710±10	1670±10	porosimétrie Hg
Densité apparente (kg/m <sup>3</sup> )	1590±10	1570±10	porosimétrie Hg
Porosité ouverte	6,5%±0,5%	6,1%±0,5%	calcul
Taux de fibres	45,0%±0,5%	42,0%±0,5%	calcul
Taux de résine	48,5%±0,5%	51,9%±0,5%	calcul
Taux de fil	58,5%±0,5%	59,9%±0,5%	calcul
Taux de résine hors fil	35,0%±0,5%	34,0%±0,5%	tomographie
Taux de résine intrafil	17,1%±0,5%	21,4%±0,5%	calcul
Taux de fibre intrafil	82,9%±0,5%	78,6%±0,5%	analyse d'images

Tableau 2 : Densité et taux de phases des échantillons.

La diffusivité thermique des composites est estimée en utilisant une méthode flash résolue en espace. L'acquisition de la réponse en température à une excitation de flux de chaleur s'effectue à l'aide d'une caméra infrarouge à matrice de détecteurs de taille 320 × 256 pixels. La caméra IR permet de mesurer au cours du temps, la température en un très grand nombre de points sur l'échantillon. A partir des courbes de l'évolution de la température en chaque point, il est possible de trouver la diffusivité thermique transverse (moyennée selon l'épaisseur de la plaque) en chacun de ces points [4,5]. Sur les cartographies des diffusivités obtenues pour les deux plaques (Figure 2a), des moyennes sont calculées ; on a également accès aux histogrammes de diffusivité thermique (Figure 2b). D'après les résultats obtenus, la plaque régulière possède une diffusivité transverse (0,31 mm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>) légèrement plus importante que la plaque irrégulière (0,28 mm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>). La comparaison des histogrammes permet également de constater un étalement moins important des valeurs pour le matériau régulier. Tout se passe comme s'il y avait une deuxième population de valeurs, centrée autour de 2,55 mm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>, présente dans le matériau irrégulier, en plus de la population principale centrée sur 2,8 mm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>.

Par ailleurs, la conductivité thermique de la plaque irrégulière selon ses 3 axes principaux a été mesurée par la méthode du disque chaud ou « Hot Disk »[6]. Cette méthode permet d'accéder à la diffusivité thermique longitudinale et transversale par une méthode itérative. Ces mesures ne concernent que la plaque irrégulière et sont effectuées sur un échantillon de dimension 4 × 5 cm<sup>2</sup>. La taille des hétérogénéités étant de l'ordre de 2cm, le volume élémentaire représentatif (VER) contenant l'information nécessaire aux changements d'échelle devrait avoir des dimensions transverses d'un ordre de grandeur supérieur à cette taille. Cette condition n'est pas satisfaite pour les plaques irrégulières. Ces résultats, cependant, sont en bon accord avec ceux obtenus par la thermographie, comme on peut le voir au Tableau 3 (environ 5% d'écart).

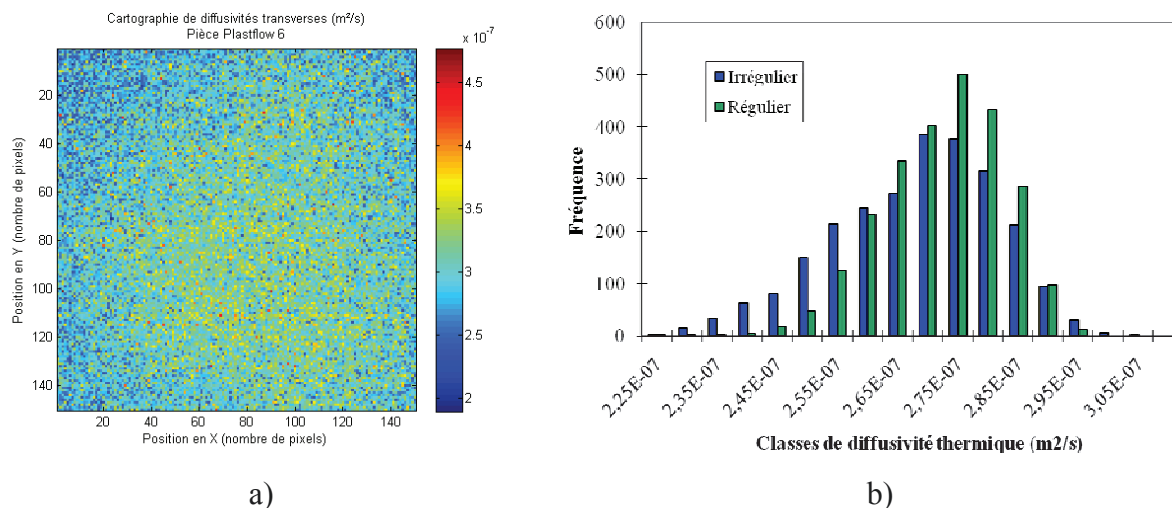


Figure 2 : a) Cartographie de diffusivité de la plaque régulière (1 pixel = 0,66mm) b) Histogramme des diffusivités thermiques des plaques

Propriété	Echantillon régulier	Echantillon irrégulier	Méthode d'obtention
Capacité calorifique volumique (J/cm <sup>3</sup> /K)	1.70 ±0.01	1.63 ±0.03	Plan chaud[7]
Diffusivité thermique transverse (mm <sup>2</sup> /s)	0,31 0,26	0,28 -	Flash + caméra IR Flash + Parker
Diffusivité thermique transverse (mm <sup>2</sup> /s)	-	0,264	Disque chaud
Diffusivité thermique longitudinale (mm <sup>2</sup> /s)	-	0,314	Disque chaud
Conductivité thermique transverse (W/m/K)	0,533 -	0,479 0,456	Flash + calcul* HD + calcul*
Conductivité thermique longitudinale (W/m/K)	-	0,543	calcul*

Tableau 3 : Propriétés thermocinétiques des composites étudiés (\* avec  $K = \alpha \times \rho C_p$ )

### 3. Détermination de la conductivité par changement d'échelle

La structure du matériau est évaluée par microscopie optique et par tomographie à rayons X. Ainsi, des descriptions détaillées de la structure à deux échelles différentes sont disponibles (échelle des fibres et échelle du tissu). Ces descriptions sont des paramètres d'entrée pour le calcul de la conductivité thermique effective à partir des valeurs des composants, qui fait appel à deux changements d'échelle (Figure 3).

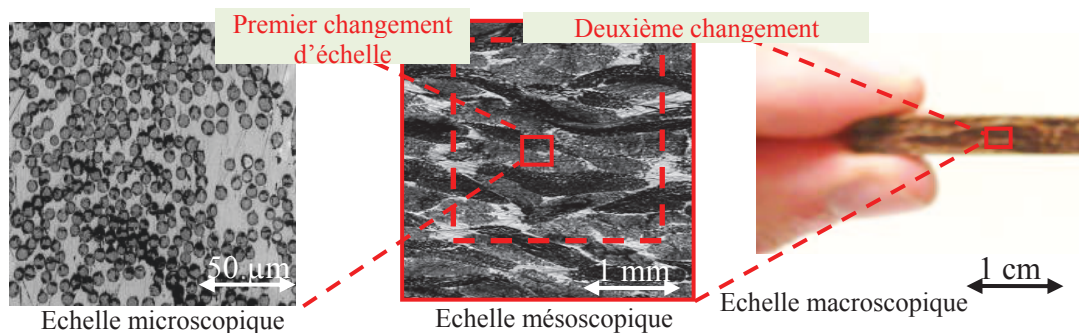


Figure 3 : Double changement d'échelle

Ces deux changements d'échelle permettent de prendre en compte l'effet de l'anisotropie locale du matériau à petite échelle dans la détermination du tenseur de conductivité macroscopique du matériau composite.

### 3.1. Premier changement d'échelle : utilisation de la microscopie optique

La première mise à l'échelle porte sur la section transversale des fils et se fait à l'aide d'images obtenues par microscopie optique. Un traitement d'image permet de séparer les fibres de la matrice et de leurs voisines et donc de prendre en compte la résistance thermique de contact. Ce traitement est basé sur une segmentation, une fermeture mathématique, et l'application d'une méthode de détermination de ligne de partage des eaux (watershed). Le logiciel ImageJ a été utilisé pour ces opérations. Les taux de fibres dans les fils sont reportés au Tableau 1.

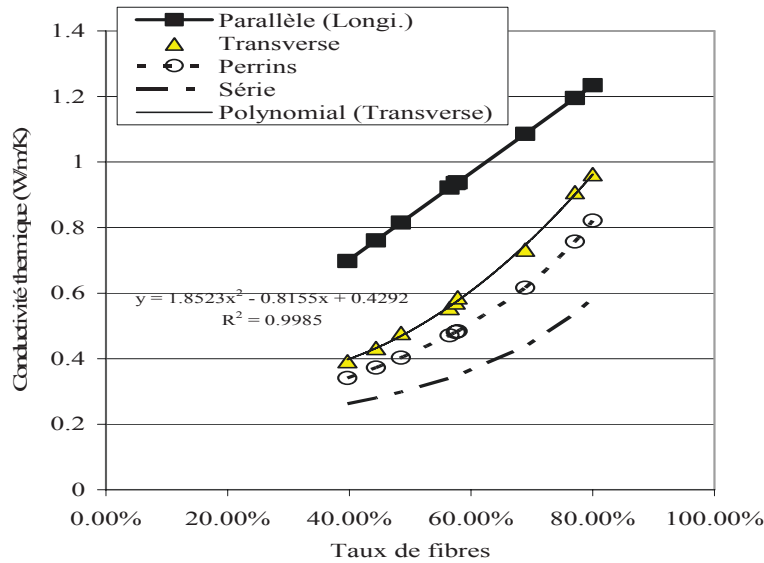


Figure 4 – Conductivité thermique transverse en fonction de taux de fibres

La connaissance des propriétés thermiques des composants (fibre, matrice) est une donnée essentielle de cette étape de changement d'échelle. Alors que pour la détermination de la conductivité thermique longitudinale,  $K_L$ , une simple loi des mélanges est suffisante, la méthode de prise de moyenne volumique est utilisée pour déterminer la conductivité thermique transverse,  $K_T$ . Cette méthode, permet, à partir des équations à une échelle donnée d'obtenir des équations à l'échelle supérieure et des problèmes de fermeture donnant accès aux propriétés effectives. La résolution numérique du problème de fermeture associé à la conduction de la chaleur sur une cellule élémentaire périodique représentative du milieu conduit au tenseur de conductivité thermique effective [8]. La conductivité transverse effective,  $K_T$ , obtenue pour diverses cellules de fraction volumique de fibre  $\phi_f$  différente est présenté sur la figure 5. Les valeurs obtenues sont très proches de celles obtenues analytiquement par Perrins *et al.* [9] pour un arrangement hexagonal de fibres. La corrélation obtenue entre  $K_T$  et  $\phi_f$  à partir de ces calculs sera une donnée nécessaire au changement d'échelle suivant.

### 3.2. Deuxième changement d'échelle : utilisation de la tomographie X

Le deuxième changement d'échelle s'effectue à partir d'une image globale du matériau à moindre résolution. Cette image est subdivisée en plusieurs sous volumes (Fig. 5). Les lois issues du premier changement d'échelle permettent de calculer, à partir du taux de fibre et de la direction principale d'anisotropie de chaque sous volume, le tenseur diagonal de conductivité thermique dans les axes principaux du sous volume considéré. On les utilise donc pour évaluer le tenseur local de conductivité en chaque sous-volume. Ensuite, la

résolution du problème de fermeture associé à la méthode de prise de moyenne volumique permet de déterminer le tenseur de conductivité global du composite.

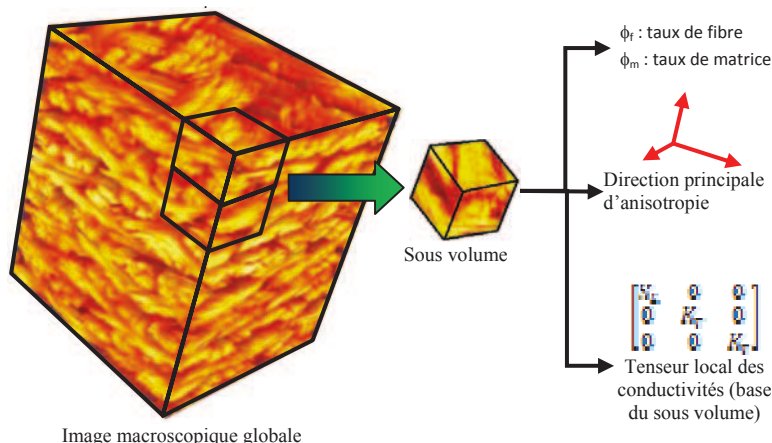
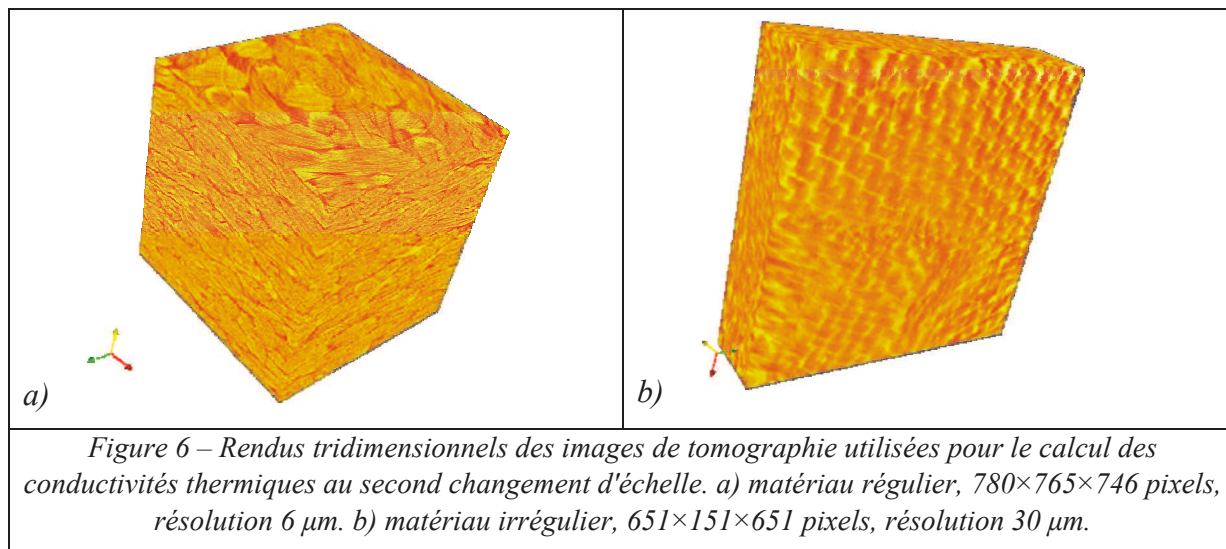


Figure 5: Principe du second changement d'échelle.

Pour chaque sous-domaine, après un seuillage binaire permettant de distinguer les fibres de la matrice, les directions d'anisotropie sont détectées à l'aide d'une méthode de marche aléatoire [10]. Cette méthode, en simulant la diffusion d'un grand nombre de marcheurs dans les fibres permet d'accéder à l'orientation privilégiée des fibres dans le sous-volume, grâce à l'analyse des vecteurs et valeurs propres du tenseur de covariance des déplacements relatifs des marcheurs.



La fraction volumique des fibres dans chaque sous-volume est détectée à partir du traitement d'images tomographiques de faible résolution en niveau de gris. Pour déterminer la fraction volumique de matrice,  $\phi_m$ , une loi linéaire par morceaux est utilisée : le premier mode de l'histogramme correspond à la matrice inter-fil, tandis que le deuxième correspond aux fils, pour lesquels les conductivités thermiques longitudinale ( $K_L$ ) et transverse ( $K_T$ ) sont trouvées à partir des corrélations obtenues suite au premier changement d'échelle. A chaque sous-volume est affecté alors un tenseur diagonal de conductivité thermique dans les axes principaux du sous-volume considéré [11]. Avant la phase finale de détermination de la conductivité macroscopique, chaque tenseur diagonal est ramené dans les axes de la plaque. Le tenseur de conductivité macroscopique est ensuite déterminé à partir des données de chaque sous-domaine en résolvant le problème de fermeture associé à la méthode de prise de moyenne volumique.

Les conductivités ont été calculées par la méthode de double changement d'échelle sur les échantillons régulier et irrégulier. Les volumes représentatifs étant très différents, les images

tomographique du composite régulier ont été faites à 6µm de résolution (*i.e.* 1 pixel = 6µm) et celles du composite irrégulier à 30 µm de résolution. La figure 6 montre des rendus tridimensionnels de ces images de tomographie. On remarque que la texture du composite est bien visible et que la distinction des phases est assez aisée, en particulier dans les images à 6 µm de résolution. Ceci a permis d'estimer correctement le taux de matrice hors fil (Tableau 2).

Le calcul du tenseur de conductivité,  $K$ , donne pour le composite régulier :

$$K = \begin{bmatrix} 0.67 & -8.2 \cdot 10^{-5} & -3.48 \cdot 10^{-4} \\ -9.8 \cdot 10^{-5} & 0.67 & -2.6 \cdot 10^{-3} \\ -3.61 \cdot 10^{-4} & -2.6 \cdot 10^{-3} & 0.55 \end{bmatrix} \text{ W/m/K.} \quad (2)$$

Les termes non diagonaux de ce tenseur sont négligeables : les directions 1, 2 et 3 de l'image de tomographie coïncident donc avec les directions principales de conduction. On peut aussi remarquer que la conductivité longitudinale (directions 1 et 2, identiques) est plus élevée que dans la direction 3 (0,67 W/m/K contre 0,55 W/m/K). La conductivité transverse est à comparer à la conductivité obtenue par thermographie flash présentée au paragraphe 3.2 qui donnait une valeur de 0,533 W/m/K. Le calcul par double changement d'échelle à partir des images de tomographie de la plaque régulière donne donc des valeurs proches des valeurs mesurées (5% d'écart).

Pour le composite irrégulier, le calcul du tenseur de conductivité donne :

$$K = \begin{bmatrix} 0.7 & -2.9 \cdot 10^{-3} & -1.8 \cdot 10^{-2} \\ -2.9 \cdot 10^{-3} & 0.62 & -2.9 \cdot 10^{-3} \\ -1.8 \cdot 10^{-2} & -2.9 \cdot 10^{-3} & 0.59 \end{bmatrix} \text{ W/m/K.} \quad (3)$$

Pour ce tenseur aussi, les termes non diagonaux sont négligeables. Par contre, les termes  $K_{11}$  et  $K_{22}$  ne sont pas égaux. L'organisation moins régulière des fibres dans les plaques irrégulières rompt donc l'égalité des conductivités dans les directions 1 et 2. La valeur dans la conductivité transverse (direction 3) est cependant toujours plus faible que la conductivité longitudinale (sens des fibres). Lorsque l'on compare ces résultats aux données expérimentales obtenues par thermographie flash ou par la méthode du disque chaud présentées plus haut, on remarque que les valeurs calculées sont supérieures aux valeurs mesurées: conductivité transverse calculée de 0,59 W/m/K pour une conductivité transverse mesurée de 0,479 W/m/K par la méthode flash et 0,456 W/m/K par la méthode de disque chaud. Concernant la conductivité longitudinale, les valeurs calculées sont aussi éloignées des mesures par disque chaud (0,543 W/m/K). L'anisotropie thermique de la plaque est par contre bien retrouvée. De même, comme on l'observe en thermographie flash, la conductivité transverse est plus faible sur la plaque irrégulière que sur la plaque régulière.

A partir de ces tenseurs il est possible d'évaluer l'anisotropie du matériau ( $\tau$ ) dans la direction transverse en utilisant la relation (4):

$$\tau = \frac{\langle K_{11}, K_{22} \rangle - K_{33}}{\langle K_{11}, K_{22} \rangle} \quad (4)$$

où  $\langle K_{11}, K_{22} \rangle$  est la moyenne entre  $K_{11}$  et  $K_{22}$ . On trouve une anisotropie de 17,3 % et 10,6 % respectivement pour le matériau régulier et le matériau irrégulier. Ce résultat est logique car la diffusivité longitudinale du matériau irrégulier est diminuée à cause de la non-continuité des fibres à travers tout le matériau.



## 4. Conclusions

Nous avons présenté une étude thermique et structurale d'une famille de composites silice/phénolique axée sur deux parties : (i) la détermination des propriétés structurales et thermiques par des expériences variées, dont une (diffusivité des fibres) est originale ; et (ii) le calcul par double changement d'échelle basé sur images 2D et 3D des conductivités effectives des composites à partir des valeurs des constituants et de leur disposition relative. Les résultats sont encourageants, bien qu'il reste encore des efforts à accomplir sur le plan de la maîtrise du changement d'échelle. En particulier, une étude de sensibilité des résultats vis-à-vis des différentes étapes du traitement des images (résolution, filtrages, etc...) est souhaitable afin de quantifier la fiabilité de la méthode et garantir son utilisation pour du dimensionnement de nouveaux matériaux.

## Références

- [1] M. L. Gregori, E. de Aquino Barros, G. Petraconi Filho, S. Fonseca Costa , "Mechanical and Ablative Properties of Silica-Phenolic Composites for Thermal Protection Systems", *Procs. 6<sup>th</sup> Eur. Workshop on TPS and Hot Structures*, Stuttgart, 1-3 April 2009.
- [2] M. L. Gregori, E. de Aquino Barros, G. Petraconi Filho, L. C. Pardini, S. Fonseca Costa, "Ablative and Mechanical properties of quartz phenolic composites", *J. Aerosp. Technol. & Manag.* 1 (2009), 63-68.
- [3] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, and G. L. Abbott, "Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity", *J. Appl. Phys.* 32 (1961), 1679-1684.
- [4] M. Bamford, J.-C. Batsale, J. Toutain, C. Pradère, A. Kusiak, O. Fudym, J. Lamon, G. Vignoles, O. Loseille, B. Humez, "Thermographie Infrarouge et mesure de champs", Journée SFT "Problèmes inverses de champs", 2007.
- [5] B. Hay, J. R. Filtz, J.-C. Batsale, "Mesure de la diffusivité thermique par la méthode flash", *Techniques de l'ingénieur. Mesures et contrôle*, RC3 (2004), R2955.1-R2955.12
- [6] Y. He, "Rapid thermal conductivity measurement with a hot disk sensor", *Thermochimica Acta* 436 (2005), 122-129.
- [7] Z. Acem, "Nouveaux composites graphite/sel destinés au stockage de l'énergie thermique à haute température: de l'élaboration au développement de méthodes de caractérisation thermique de matériaux conducteurs orthotropes, Thèse de Doctorat, Université Bordeaux 1, 2007.
- [8] J. Lux, A. Ahmadi, C. Gobbé, C. Delisée, Macroscopic thermal properties of real fibrous materials: Volume averaging method and 3D image analysis, *Int. J. of Heat & Mass Transfer* 49 (2006), 1958-1973.
- [9] W. T. Perrins, D. R. McKenzie, R. C. McPhedran, "Transport properties of regular arrays of cylinders", *Proc. Roy. Soc. Lond. A* 369 (1979), 207-225.
- [10] O. Coindreau, and G. L. Vignoles, "Assessment of structural and transport properties in fibrous C/C composite preforms as digitized by X-ray CMT. Part I : Image acquisition and geometrical properties", *J. Mater. Res.* 20 (2005), 2328-2339.
- [11] G. L. Vignoles, O. Coindreau, A. Ahmadi, and D. Bernard, "Assessment of structural and transport properties in fibrous C/C composite preforms as digitized by X-ray CMT. Part II : Heat and gas transport" *J. Mater. Res.* 22 (2007), 1537-1550.

## Remerciements

Les auteurs souhaitent remercier R. Huillery (Thermoconcept) pour les mesures de disque chaud; J.-L. Dauvergne (I2M) pour les mesures de plan chaud ; R. C. Oliveira da Rosa et V.-E. Renaud (ENSAM) pour les mesures de densité et l'aide à l'acquisition de tomographies ; G. Caillard & V. Rolland de Chambaudoin d'Erceville (ENSAM) pour la microscopie et l'aide aux calculs de changement d'échelle.