

# Écoulements capillaires et chargés dans les procédés d'élaboration de composites par APS et RMI

E. ARQUIS<sup>a</sup>, A. PONS<sup>a,b</sup>, K. DUGOIS<sup>a,b</sup>, C. LEBOT<sup>a</sup>, M. VALAT<sup>a</sup>, S. VINCENT<sup>a,c</sup>, C. DESCAMPS<sup>b</sup>

a. Institut de Mécanique et Ingénierie, I2M, CNRS UMR 5295, Université de Bordeaux, Bordeaux INP, ENSAM, e.arquis@i2m.u-bordeaux1.fr

b. SAFRAN Herakles, Le Haillan, cedric.descamps@herakles.com

c. Laboratoire Modélisation et Simulation Multi Echelle, MSME, CNRS UMR 8208, Université Marne-La-Vallée, stephane.vincent@u-pem.fr

## Résumé :

*Un procédé alternatif envisagé pour la réalisation de matériaux composites [1,2] à matrice céramique consiste à combiner un procédé APS (Aspiration Poudres Submicroniques) avec un procédé RMI (Reactive Melt Infiltration). L'étape APS consiste à assurer une première densification du composite par l'apport, par injection forcée, de nanocharges qui viennent remplir les espaces poreux entre les fibres. La seconde phase, (R)MI, consiste à finir la compaction du milieu composite en amenant cette fois par imbibition la phase métal. Ces deux aspects du procédé sont abordés ici de manière pour l'instant décorrélée car mettant en jeu des phénomènes physiques (filtration - mouillabilité), des équations (Phillips, Darcy-Brinkman,...) et des traitements numériques (VOF-PLIC, ...) spécifiques. Nous présentons des premiers résultats numériques de validation ainsi que le traitement de premiers cas qui permettent d'apprécier la capacité de la modélisation mais aussi les difficultés rencontrées pour les configurations réelles.*

## Abstract :

*An alternative process proposed for the manufacturing of ceramic matrix composite (CMC) materials [1,2] comprises combining an APS process ("Aspiration Poudres Submicroniques" in french) with a RMI process (Reactive Melt Infiltration). APS step is to make a first densification of the composite with the transfer by forced injection of nano-particles coming fulfill the pore spaces between the fibers. The second phase (R)MI is to finish the compaction composite medium by bringing this time by imbibing the metal phase. These two aspects of the process are discussed here separately because involving different and specific physical phenomena (filtration - wetability), equations (Phillips, Darcy-Brinkman, ..) and numerical treatments (VOF-PLIC, ...). We present the first numerical validation results as well as the treatment of primary test-cases that assess the modeling ability of our CFD code but also to point out the difficulties encountered in the actual configurations.*

## Mots clefs : Mots clefs (14 gras)

Capillarité, Fluide chargé, Milieu poreux, Composites, Modélisation, Simulation numérique

# 1 Introduction

La communication présentée ici est le résultat de travaux conduits en quasi-parallèle dans deux thèses CIFRE avec la société SAFRAN Herakles. Les travaux sont complémentaires, par l'étude des phénomènes physiques et les échelles d'observation, l'objectif final étant de combiner les deux approches pour modéliser le procédé d'injection/imbibition afin d'obtenir le matériau composite à matrice céramique le plus performant et avec un procédé rapide et économique. Chacun des phénomènes physiques, même pris séparément est complexe et surtout délicat à modéliser.

Si on considère tout d'abord le phénomène de remontée capillaire dans un milieu divisé (poreux), on est en effet en présence du suivi d'une interface (écoulement diphasique fluide chargé / air) dont la mobilité est pilotée par des effets de tension superficielle et de mouillage fluide/ matrice poreuse (angle de contact éventuellement dynamique), dans un système mettant en jeu des échelles géométriques très différentes et présentant une topologie complexe (tortuosité).

Pour la première phase de densification, par APS donc, que nous allons regarder à une échelle mésoscopique, le problème est la description du passage d'un écoulement de fluide libre (mais chargé...) à un écoulement de fluide en milieu poreux supposé consolidé une fois que les particules forment un milieu compact.

Nous allons voir plus en détail pour chacun de ces aspects la problématique, les modèles physiques, le traitement numérique. Nous allons présenter en premier lieu des étapes de validation puis nous donnerons les résultats pour quelques réalisations dans des milieux encore très modèles, en 2D.

## 2 Déplacement par effet capillaire dans des canaux

Le déplacement d'un fluide par capillarité dans un milieu poreux peut être abordé dans un premier temps par la modélisation de ce milieu par des canaux interconnectés ou non, de sections constantes ou non, en hypothèse géométrique 2D plane (ou cylindrique) ou 3D.

Il existe une littérature plus ou moins abondante si l'on considère des tubes ou canaux droits simples (modèle et lois de Washburn initiaux et corrigés : Washburn, [3], Bosanquet, [4], De Gennes, [5], Fries et al., [6], Quéré, [7]), à section variable par exemple ondulée : Patro et al, [8], avec interconnexions (modèle de Dullien, Dullien et al., [9]). Des travaux expérimentaux existent également sur des tubes ou en milieu poreux : Hauskbee, [10], Lago et al., [11], etc.

Avant de passer à une étape de simulation sur milieu « réel », de géométrie complexe et a priori 3D, nous avons qualifié nos outils numériques sur des configurations simplifiées (canaux droits) et commencé à investiguer des configurations plus complexes (canaux à section variable : dièdre et avec connexion).

### 2.1 Remontée dans un canal droit

Cette configuration, qu'elle corresponde à une géométrie cylindrique (tube) ou plane (canal), a l'avantage de posséder des résultats analytiques et de permettre des calculs - a priori - ! simples avec une bonne résolution spatiale (maillages fins). Si on se place en régime purement visqueux (Washburn), il est ainsi établi qu'en absence de gravité ou si les conditions permettent de la négliger,

que la hauteur instantané du ménisque  $h(t)$  dans un domaine de dimension caractéristique  $D$  (diamètre ou écartement de plaques) pour un fluide de tension superficielle  $\gamma$  et pour un angle de contact statique  $\theta$  est donnée par la relation (1):

$$h(t) = \sqrt{\frac{\gamma e \cos(\theta)}{3\mu} t} \quad (1)$$

Cette configuration a été reprise numériquement, Figure 1, en utilisant le code THETIS de I2M [12] avec une méthode eulérienne diphasique à l'échelle des déformations d'interface (approche Brackbill / VOF-PLIC) et une méthode de traitement de l'angle de contact originale, Guillaument et al., [13] que nous ne décrivons pas ici. Cette méthode qui a été validée à partir de la simulation d'une goutte posée sur une surface plane, a été utilisée au laboratoire avec un certain succès pour la simulation de la mobilité d'un pont liquide très visqueux par effet centrifuge, Bennazouk et al., [14] ou pour celle de bulles créées par injection dans des canaux en « T », Wielhorski et al., [15]. Cependant le cas d'une remontée purement capillaire et avec des fluides a priori très différents de par leurs viscosité et tension superficielle nécessitait une validation.

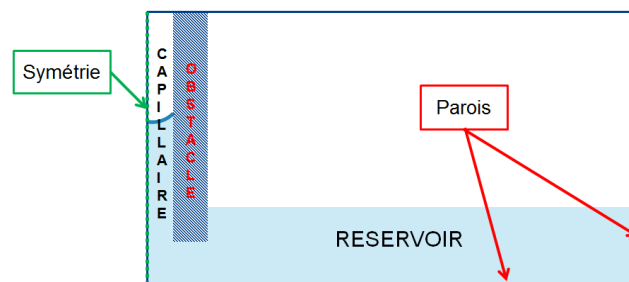


Figure 1  
Domaine de calcul et conditions limites

La reproduction (confrontation) des résultats analytiques avec le numérique n'a pas été très aisée (soin sur les conditions limites, en bas de domaine notamment, d'où la prise en compte d'un domaine de calcul incluant un « réservoir »). De plus, il est apparu que le régime transitoire d'établissement du ménisque influait de manière non négligeable sur la dynamique de remontée du fluide (on part d'un ménisque plat avec une vitesse nulle et une distribution de pression uniforme alors que le ménisque devrait être formé, que la vitesse devrait être certes nulle, mais la distribution de pression conforme à la loi de Laplace). En outre, la vitesse dans les premiers instants peut être très grande (infinie à  $t=0$  selon le modèle de Washburn !) et donc les phénomènes inertiels non négligeables, et corrélativement l'angle de contact instantané différent de la valeur en statique ou quasi-statique...

Cependant, en traitant ces difficultés, nos simulations reproduisent assez fidèlement les lois théoriques comme le montrent les Figures 2 et 3 ci-dessous. Les conditions de simulation sont les suivantes : masse volumique  $1000 \text{ kg/m}^3$ , viscosité dynamique  $0.001 \text{ Pa.s}$ , tension  $0.073 \text{ N/m}$ , écartement du canal plan,  $e$ ,  $1 \text{ }\mu\text{m}$  et angle de contact (statique) égal à  $0$ . Le paramètre  $\Delta$  qui figure sur la Figure 2 est en fait le rapport de taille de maille  $\Delta x$  sur l'écartement  $e$ .

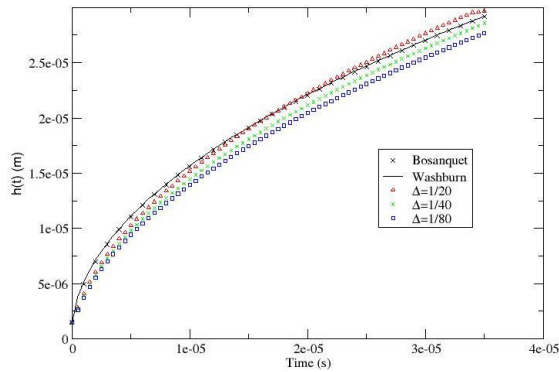


Figure 2

Evolution temporelle de la position du ménisque

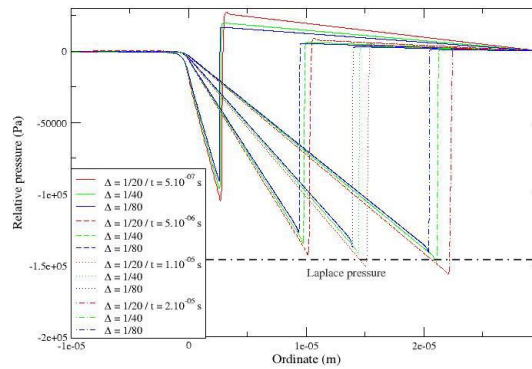


Figure 3

Distribution spatiale de la pression le long du canal

Cette étape nous permet de considérer que l'outil numérique THETIS est adapté à traiter le problème de la mise en mouvement mobilité d'une interface sous l'effet de phénomènes de mouillage.

## 2.2 Remontée dans un dièdre

L'étape suivante a concerné le même problème qu'au 2.1 mais cette fois dans un canal (2D, plan) de section variable, autrement dit dans un dièdre (Figure 4). Cette géométrie, encore très simplifiée, figure cependant ce qui se passe dans un espace poral lorsque le fluide passe un col. Au-delà de la spécificité physique, cette configuration nous a permis de vérifier que notre outil numérique est capable de traiter la mouillabilité sur des objets dont la surface ne suit pas les lignes de maillage (« THETIS » travaille en Volumes Finis structurés Cartésien : autrement dit une ligne inclinée par rapport au maillage est en fait une interface en « marche d'escalier » ou encore, une ligne courbe est une ligne polygonale).

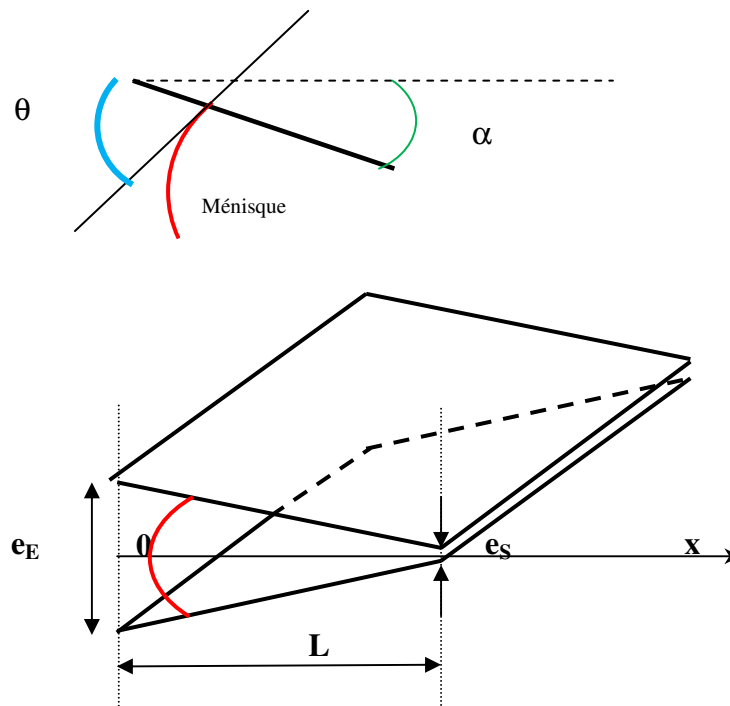


Figure 4

Géométrie du dièdre et zoom sur la zone de contact ménisque / paroi inclinée

Nous avons établi une relation analytique pour ce problème dans la géométrie donnant la vitesse du ménisque  $dh(t)/dt$  en fonction des données géométriques du dièdre (angle d'ouverture) que l'on retrouve dans les constantes A et B et des propriétés du fluide (viscosité, tension, angle de contact statique et constant) entrant dans la constante C :

$$\frac{dh}{dt} = C \frac{(A h_0 + B)^2}{((A h_0 + B)^2 - (A h(t) + B)^2)} \quad (2)$$

Nous n'avons pas trouvé une solution analytique à cette équation mais avons pu en obtenir une par MatLab et par voie numérique.

Un résultat typique est donné sur la Figure 5: on constate que la remontée du fluide représentée par  $h(t)$  dans un dièdre fermant est plus rapide que dans un canal droit de section identique à la section d'entrée du dièdre ( $e_E$ ) et que l'évolution semble quasi-linéaire pour des temps longs, donc que la vitesse de remontée est constante (et non en racine de t).

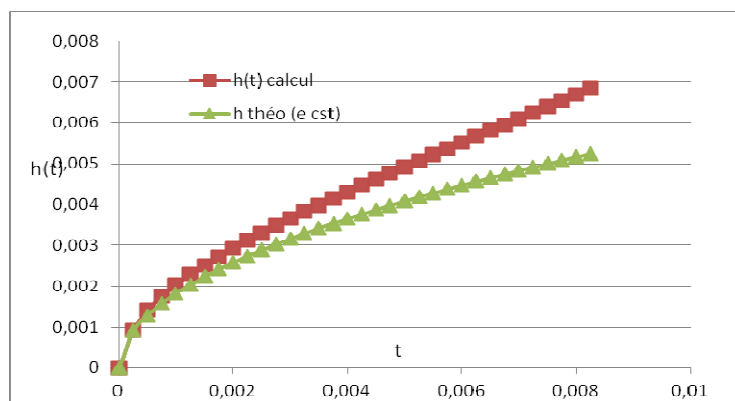


Figure 5

Comparaison des hauteurs de ménisque entre une géométrie « dièdre » et « canal droit »

Nous avons ensuite conduit une simulation numérique dans une telle géométrie mais avec une succession de dièdres fermant/ouvrant, en prenant un fluide fictif (i.e. plus visqueux que l'eau, mais de tension superficielle plus faible) soit de viscosité dynamique  $10^{-2}$  Pa.s, de tension  $7.3 \cdot 10^{-3}$  Nm<sup>-1</sup> et pour un angle de contact statique nul.

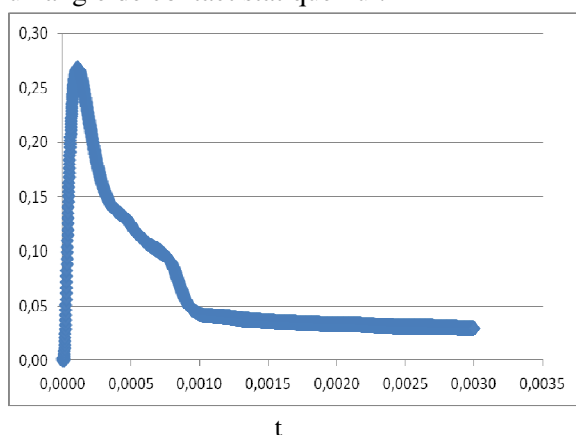


Figure 6

Evolution temporelle de la vitesse (m/s) du fluide en partie basse du dièdre

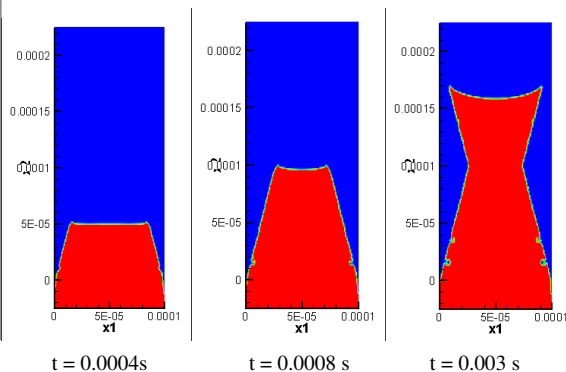


Figure 7

Position du fluide à différents instants de la remontée

La Figure 6 à gauche ci-dessus représente la vitesse du fluide en entrée de dièdre, sur l'axe, ce n'est donc pas exactement la vitesse du ménisque. On remarque tout d'abord l'amplitude assez élevée de cette vitesse (0.25 m/s à 0.05 m/s sur le temps d'observation) et la présence de plusieurs périodes: en tout début le ménisque s'établit, dans la zone droite du canal, puis apparaît une décroissance relativement régulière entre  $t = 0.0001$  s jusqu'à  $t = 0.0008$  s où le fluide s'écoule dans la zone rétrécie. On note une chute brusque entre ce dernier temps et 0.0009 s, puis une quasi-stabilisation dans la période où le fluide passe dans la zone élargie (on note que ce comportement en vitesse constante a été mis en évidence sur le cas « analytique », Figure 5. On visualise bien ceci sur la Figure 7 de droite, on voit aussi que l'angle de contact n'est pas constant, qu'il est manifestement très différent de la valeur de l'angle statique imposé ( $0^\circ$ ), l'inertie dans les premiers instants ayant tendance à redresser l'interface et donc à produire un angle de contact dynamique bien supérieur. De ce fait, la comparaison avec la solution de (2) n'a pas pu être faite (cf. angle de contact fortement variable au cours de la remontée) : nous allons reprendre un cas avec un temps d'observation plus grand afin de sortir du régime inertiel.

### 2.3 Remontée dans deux canaux connectés

Enfin, des tests, pour l'instant uniquement qualitatifs, ont été réalisés sur un milieu (Figure 8) où les zones solides figurent un pavage et dans lequel les canaux sont droits mais inclinés et se reconnectent périodiquement. Par cette configuration, on analyse le rendu de la mobilité de l'interface dans une zone s'élargissant puis se rétrécissant brutalement tel que cela se produit dans un milieu poreux réel. Ce travail est préparatoire à la confrontation de nos résultats numériques avec le modèle de Dullien [9]. Les propriétés du fluide utilisées pour ces calculs sont identiques à celles mentionnés pour les calculs en canaux droits dans la section 2.1, en ce qui concerne les dimensions par contre, la largeur des canaux est de  $200 \mu\text{m}$ .

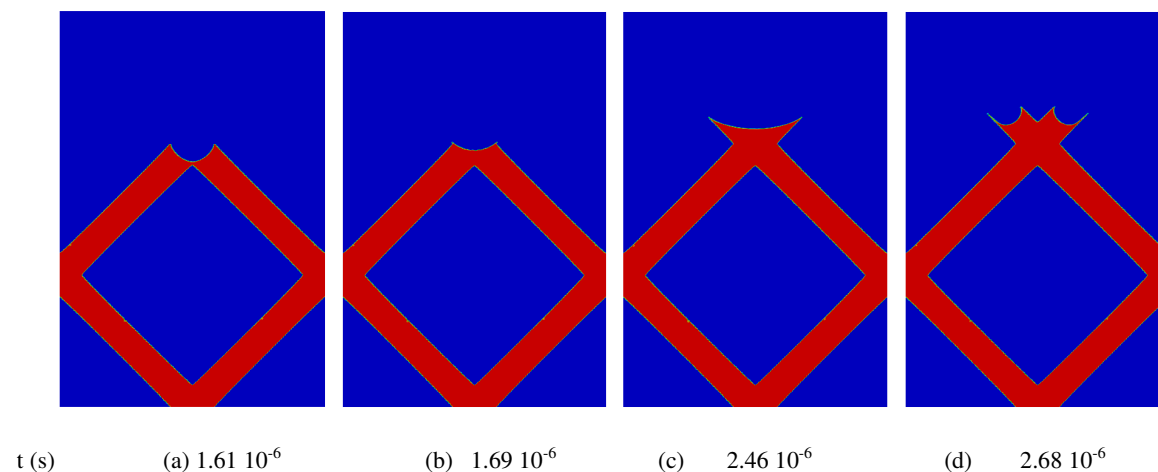


Figure 8 : évolution de la fraction de liquide dans un réseau de canaux connectés

La figure 8 montre la progression du fluide à différents instants lors de la reconnexion des ménisques issus de deux canaux confluent : on voit que cette reconnexion se passe sans incident. On remarque aussi que le temps entre les graphes (a) et (b) est très court par rapport à celui entre (b) et (c) : la reconnexion des ménisques se fait rapidement cf. une dimension locale du col plus grande que celle du canal individuel.

### 3 Ecoulement forcé d'un fluide chargé dans un milieu poreux

Le problème traité ici est, à ce stade du moins, déconnecté du précédent : les effets de mouillage ne sont pas pris en compte (cf. pas de front diphasique fluide-gaz), le mouvement du fluide est piloté par une vitesse d'injection ou par une pression d'injection et l'échelle d'observation est plus mésoscopique : le fluide bien que chargé est considéré comme un fluide équivalent (les particules ne sont pas différenciées).

On considère (Figure 10) la simulation simplifiée d'une expérimentation consistant en l'arrivée continue d'un front de fluide chargé dans un domaine initialement saturé avec un fluide clair (non chargé), domaine contenant des inclusions solides figurant les mèches de fibres constitutives d'un tissu poreux, en une couche unique ou multiple. En sortie de domaine, un « filtre » est disposé de manière à ne pas laisser passer les particules du fluide chargé et à maintenir le tissu.

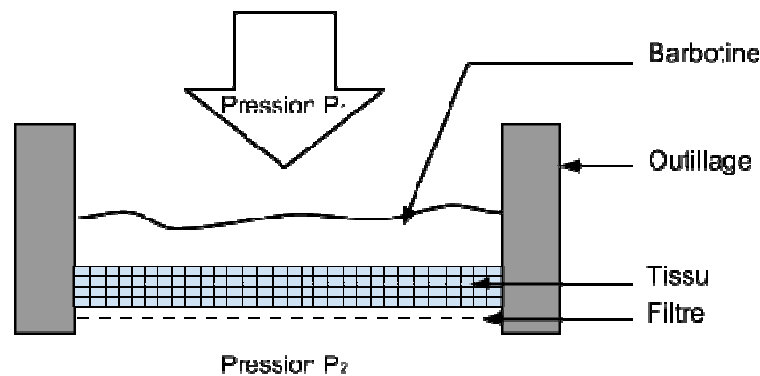


Figure 10 : Schématisation du procédé APS

L'évolution de la concentration en particules dans le fluide est modélisée par une équation de Phillips [16], la viscosité du fluide en fonction de cette concentration étant quant à elle rendue par une loi de Krieger [17]. Une fois la compaction du milieu réalisée, le modèle d'écoulement de fluide passe de Navier-Stokes à Darcy grâce à une équation de Darcy-Brinkman, la perméabilité étant classiquement évaluée par une relation de type Kozeny-Carman.

Le modèle numérique implémenté doit rendre compte du blocage des particules par le filtre en zone de sortie, et du fait que la concentration est physiquement limitée (taux de compaction maximum arbitraire) et que la perméabilité atteinte après compaction est bien celle donnée par Kozeny-Carman. Il a donc fallu vérifier que ceci est bien réalisé dans l'outil de simulation avant de passer à l'étude complète et à la mise en évidence de la création de macroporosité (poches d'air) dans certaines conditions d'arrangement géométriques et de débit.

#### 3.1 Tests de validation

Le premier test que nous ne présentons pas ici en détail a consisté à vérifier la bonne prise en compte de la ségrégation des charges par cisaillement dans un tube et l'effet de la distribution de la concentration en particules qui en résulte sur le profil de vitesse (qui perd dans ce cas le caractère parabolique de type Poiseuille obtenu pour un fluide pur) tel que décrit dans Leighton et al. [18]. Nous avons comparé nos résultats numériques avec ceux de Hampton et

al. [19] et l'accord comme on peut le voir sur la Figure 11 ci-dessous est satisfaisant pour différentes concentrations initiales.

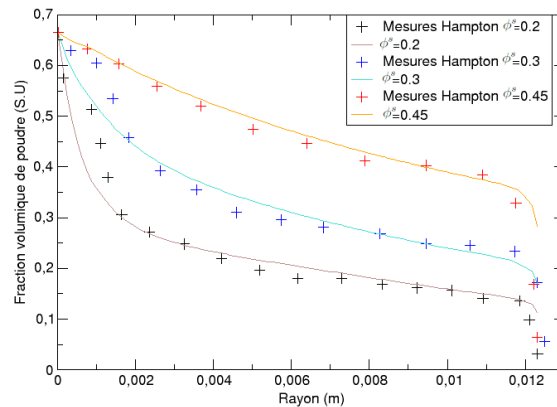


Figure 11 : Comparaison numérique / expérimental [19] de la distribution de concentration pour un écoulement de fluide chargé dans un tube

Ensuite nous avons testé la croissance d'un « gâteau » dans une configuration purement 1D : un fluide chargé uniformément à une concentration initiale donnée est poussé dans un domaine dont l'extrémité est fermée par un filtre qui laisse passer le fluide clair mais retient les particules. On peut voir sur la figure 12 le scénario de constitution du gâteau ainsi que la cinétique de croissance de son épaisseur (Figure 13) comparée à la relation théorique établie par Belfort et al [20]. Là-encore un très bon accord est observé entre simulations et résultats de la littérature.

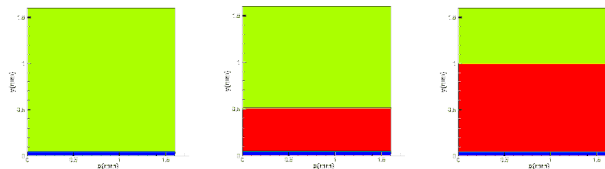


Figure 12  
Visualisation de la densification avec filtrage

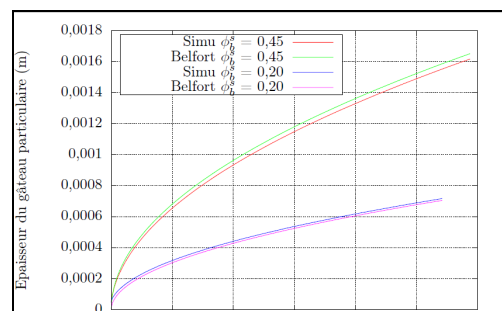


Figure 13  
Comparaison Num /Théo [20] épaisseur de gâteau

## 3.2 Premières simulations

La configuration et les conditions aux limites sont les mêmes que précédemment mais le milieu fibreux est constitué de nappes de tissus présentant un arrangement géométrique irrégulier (décalage du motif d'une nappe à l'autre). En outre un créneau de concentration est injecté (succession fluide clair (« bleu ») - fluide chargé à compaction maximale (« rouge » - fluide clair (« bleu »). La cartographie de concentration en cours d'injection est représentée sur la Figure 14 ci-dessous :



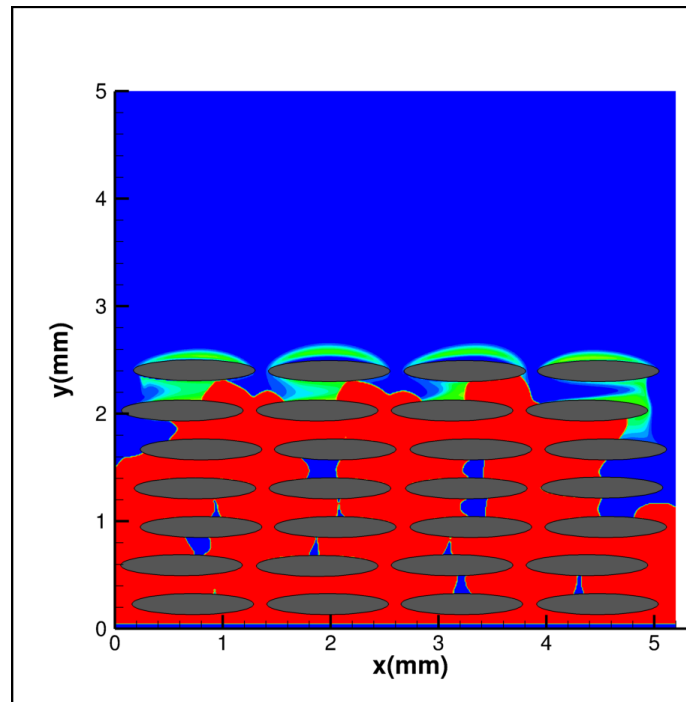


Figure 14 : instantané de la concentration de charges (100% en rouge et 0% en bleu) lors de l'injection au travers d'un tissu-modèle 2D « désorganisé ».

On voit apparaître entre certaines mèches de nappes successives des zones exemptes de charge, créant des macropores dans le matériau composite final, ce qui est évidemment gênant en termes de qualité du matériau. Le mécanisme de création de ces macropores n'est pas actuellement totalement compris ni maîtrisé, mais il est clair que l'arrangement géométrique joue un rôle ainsi que l'inertie de l'écoulement qui privilégie des recirculations.

## 4 Conclusions

Cette communication présente les avancées d'un travail visant à comprendre et quantifier les écoulements d'un fluide chargé ou non dans un milieu poreux dans le cadre des procédés d'élaboration des matériaux composites. Pour ce faire, l'outil numérique THETIS de I2M a été complété d'un modèle d'écoulement eulérien de fluide chargé avec prise en compte du filtrage et de la compaction limite. Les résultats de validation étant satisfaisants, les premières études d'infiltration dans des milieux certes très idéalisés ont permis de mettre en évidence la possibilité de création de macropores. En parallèle, la prise en compte, pour l'imprégnation par mouillage de milieux poreux, des effets capillaires s'est révélée concluante: la cinétique de remontée dans des tubes ou canaux plans a été confrontée avec succès aux relations de Washburn. Pour ce qui concerne la remontée capillaire dans des géométries plus complexes et plus représentatives des milieux réels (changement de section, raccordement de front), les résultats sont pour l'instant partiels, mais qualitativement acceptables et encourageants.

Après cette phase de mise en place et de validation des modèles physiques et numériques, nous allons entreprendre des études plus systématiques et paramétriques, dans des géométries notamment 3D.

## Références

- [1] D. Gay, D. ,Matériaux composites : 5<sup>ème</sup> Edition révisée, Lavoisier Paris, pp 13-80, 2005
- [2] M. A. Ben Abdelwahed, Mécanisme d'imprégnation en milieux fibreux : modélisation et application à la mise en œuvre des matériaux composites à fibres longues, Doctorat, Université du Havre, 2011
- [3] E.W. Washburn, The Dynamics of Capillary Flow, Phys. Rev., XVII, 3, 1921.
- [4] C.H. Bosanquet, Philos. Mag. Ser., 644, pp 525-531, 1923
- [5] P. G. De Gennes, Wetting: statics and dynamics, Reviews of Modern Physics, Vol. 57(3), pp 827-862, 1985
- [6] N. Fries, M. Dreyer, The transition from inertial to viscous flow in capillary rise, J. Coll. Int. Sci., Vol. 327, pp 125-128, 2008
- [7] D. Quéré D., Inertial capillarity, Europhys. Lett., 39, pp 533-538., 1997
- [8] D. Patro, S. Bhattacharyya, V. Jayaram, Flow kinetics in porous ceramics : Understanding with non-uniform capillary models, J. Am. Ceram. Soc., Vol. 90, No. 10, pp 3040-3046., 2007
- [9] F.A.L. Dullien, Sayed M.S.EL & Batra V.K., Rate of capillary rise in porous media with non uniform pores, J. Colloid Interface Sci., Vol. 60, No.3, pp 497-505, 1977
- [10] F. Hauksbee F., Several experiments touching the seeming spontaneous ascent of water, Phil. Trans. Royal Soc., London, Vol. 26, pp 258-266, 1708
- [11] M. Lago, M. Araujo, Capillary rise in porous media, J. Colloid Interface Sci., Vol. 234., pp 35-43, 2001
- [12] THETIS: <http://thetis.enscbp.fr/>
- [13] R. Guillaument, S. Vincent, J.P. Caltagirone, An original algorithm for VOF-based method to handle wetting effect in multiphase flow simulation, Mech. Res. Com., Vol. 63, pp 26-32, 2015.
- [14] L. Benazzouk, E. Arquis, N. Bertrand, C. Descamps., M. Valat, Motion of a liquid bridge in a capillary slot: a numerical investigation of wettability and geometrical effects, La Houille Blanche (special issue from Microfluidics'12), Published online: 15 Juillet 2013 DOI: <http://dx.doi.org/10.1051/lhb/2013025>
- [15] Y. Wielhorski, A. Ben Abdelwahed, E. Arquis E. , J. Breard, S. Glockner, Numerical simulation of bubble formation and transport in cross-flowing streams, J. Comput. Multiphase Flow, Vol. 6, Number 3, pp.299-312, 2014
- [16] R.J. Phillips, R.C. Armstrong, R.A. Brown, A.L. Graham, J.R. Abbott, A constitutive equation for concentrated suspensions that accounts for shear-induced particle migration. Phys. Fluids A: Fluid Dynamics (1989-1993), 4(1) :30-40, 1992
- [17] I.M. Krieger, Rheology of monodisperse lattices, Adv. Colloid Interface Sci., 3(2):111-136, 1972

- [18] D. Leighton A. Acrivos, (1987), The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions, *J. Fluid Mech.*, 181:415–439, 1987
- [20] G. Belfort, G., R.H. Davis, A.L. Zydney, The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration, *J. Membrane Sci.*, 96(1):1–58, 1994
- [19] R. Hampton, A. Mammoli, A. Graham, N. Tetlow, S. Altobelli, S., Migration of particles undergoing pressure-driven flow in a circular conduit., *J. Rheology (1978-present)*, 41(3):621–640, 1997