

Homogénéisation stochastique des écoulements diphasiques transverses transitoires dans les milieux fibreux pour modéliser l'élaboration de composites

Stochastic upscaling of transient transverse two-phase flows within fibrous media for composite manufacturing processes modelling

S. Drapier¹, A. Geoffre², N. Moulin¹ et J. Bruchon¹

1 : Hexcel Chair & Mines Saint-Étienne,
CNRS, UMR 5307 LGF, Centre SMS
158 Cours Fauriel 42023, Saint-Étienne, France. e-mail : {drapier,nmoulin,bruchon}@emse.fr
2 : ²CMAT UMR CNRS 7633, Mines Paris – PSL, 63-65 rue Henri-Auguste Desbrueres BP 87
91003 Évry cedex, France
e-mail : aubin.geoffre@minesparis.psl.eu

Résumé

Les procédés d'élaboration directe de matériaux composites, tels que les procédés dits « par voir liquide » (LCM), induisent des écoulements biphasiques transitoires dans des milieux fibreux multi-échelles. Sur la base de simulations par éléments finis stabilisés de ces écoulements à l'échelle des fibres, des descriptions statistiques des réponses d'éléments de volume représentatif générés de manière aléatoire sont proposées. Pour modéliser l'infusion de résine à l'échelle de la préforme, les propriétés à l'échelle du milieu homogène équivalentes sont identifiées par des analyses des données à l'aide de processus gaussiens anisotropes. Ce travail aborde en particulier l'influence des conditions à l'interface fluide-fibres, la résultante des effets capillaires et la dynamique de l'écoulement dans les régimes totalement et partiellement saturés. Une perméabilité stochastique explicite est d'abord proposée pour les régimes stationnaires. Ensuite, les pressions capillaires et la dynamique de saturation locale sont identifiées pour les écoulements biphasiques transitoires avec des effets de tension superficielle. Les grandeurs caractéristiques de ces écoulements sont également identifiées pour les 2 régimes d'écoulement, et plus spécifiquement les longueurs caractéristiques, *i.e.* les limites d'application de l'homogénéisation.

Abstract

Direct elaboration processes of composite materials, such as *LCM* processes, induce transient two-phase flows within multi-scale fibrous media. Based on stabilized finite element simulations of such flows at the fibre scale, statistical descriptions of the responses of randomly generated representative volume elements are proposed. For modelling resin infusion at the preform scale, upscaled properties are identified through data science analyses. With this objective of homogenization, this work addresses in particular the influence of boundary conditions, the resultant of capillary effects, and the flow dynamics in both fully and partially saturated regimes. An explicit stochastic permeability is first proposed for stationary regimes. Then, capillary pressures and local saturation dynamics are identified for transient two-phase flows with surface tension effects. The characteristic quantities of these flows are also identified for the 2 flow regimes, and specifically the characteristic lengths, *i.e.* the limits of application of homogenization.

Mots Clés : Infusion; Éléments finis fluide; Capillarité; Homogénéisation; Régression par processus Gaussiens

Keywords : Liquid Infusion; Fluid Finite Elements, Capillarity; Upscaling; Gaussian Process Regression

1. Introduction

Les procédés d'élaboration directe hors autoclave sont désormais largement utilisés pour la fabrication de composites structuraux avec des gains énergétiques et économiques significatifs. Ce travail concerne plus particulièrement les procédés d'infusion dans lesquels des préformes sèches architecturées, constituées de renforts à fibres longues, sont déposées sur un demi-moule avant d'être imprégnées par une résine liquide sous l'action d'un vide. Cette étape d'imprégnation est habituellement modélisée par des simulations à l'échelle de la pièce mais faisant intervenir des « paramètres matériaux » assez complexes, avec des descriptions de plus en plus fines pour tenter de s'approcher de la réalité. En effet, la pièce industrielle peut atteindre plusieurs mètres, alors qu'elle

est constituée de fibres de quelques microns de diamètre seulement. Évidemment, cela soulève de nombreuses questions sur la remontée d'informations obtenues à l'échelle de la fibre et potentiellement stochastiques, vers des échelles plus grandes, *i.e.* sur les méthodes d'homogénéisation qui peuvent être appliquées pour transposer des écoulements saturés ou partiellement saturés.

D'un point de vue plus global, on peut considérer l'imprégnation comme un écoulement diphasique, transitoire puis saturé, à travers un milieu fibreux géométriquement complexe et multi-échelle. Dans ce travail, les deux régimes d'écoulement sont modélisés et étudiés. En considérant un grand nombre de volumes, les conditions statistiques de représentativité (VER) sont d'abord posées. Les résultats de simulation sont moyennés sur ces VERs afin d'établir une réponse probabiliste qui peut être utilisée à des échelles supérieures. On établit d'abord, dans le cas d'écoulements monophasiques permanents [1], que la notion de perméabilité introduite dans la loi de Darcy (Eq. 1) peut être représentative [2] quand les conditions pour définir un VER sont réunies. Une perméabilité stochastique explicite est ensuite proposée, elle inclut les descripteurs morphologiques les plus significatifs, ainsi que l'effet du glissement de contact fluide/fibre. Ensuite, en conservant une approche statistique similaire, une situation plus réaliste est étudiée dans laquelle la résine liquide chasse l'air initialement contenu dans le milieu. La modélisation d'un tel écoulement diphasique transitoire à l'échelle microscopique nécessite impérativement de prendre en compte les effets capillaires provenant des tensions de surface agissant à l'interface fibre-fluide-air. Pendant les écoulements transitoires, ces effets capillaires sont en concurrence avec les effets visqueux, ceci contrôle grandement l'écoulement observé [3] en termes de dynamique de saturation, de chemins d'écoulement préférentiels, de porosités résiduelles, ...

2. Matériels et méthodes

2.1 Modélisation des écoulements saturés et transitoires

Dans les procédés *LCM*, les écoulements en jeu sont laminaires. On utilise classiquement les équations de Stokes, complétées pour nous par une condition dite de Navier [4] à l'interface liquide/solide Γ_{LS} pour modéliser le contact entre les fibres et le fluide. Cette condition relie la vitesse tangentielle du fluide ($\mathbf{v} \cdot \mathbf{t}$) aux contraintes de cisaillement de Cauchy $\boldsymbol{\sigma} (\mathbf{t} \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})$ grâce à une longueur de glissement ℓ_s [5] (Fig. 1) qui généralise les conditions collantes ($\ell_s \rightarrow 0$) et glissante ($\ell_s \rightarrow \infty$).

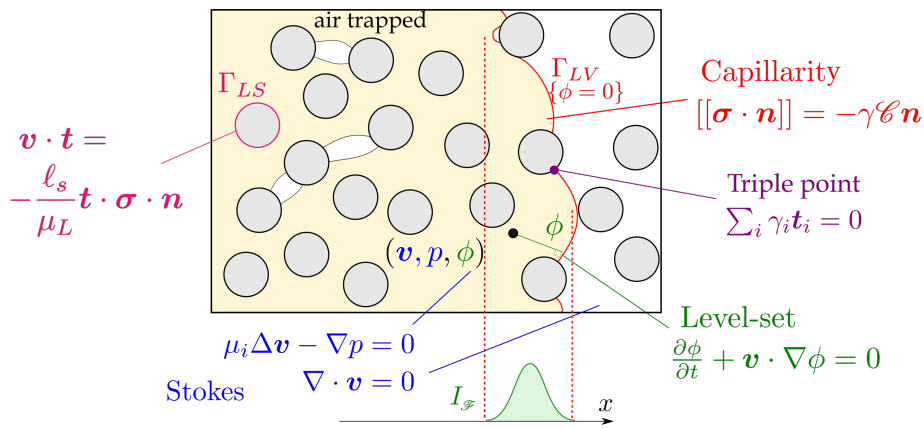


Fig. 1. Description schématique des écoulements dans une micro-structure.

En régime saturé, connaissant la vitesse du fluide de viscosité μ et sa pression p , et donc leurs moyennes, notées \mathbf{v}_D et p_D , on peut extraire la perméabilité \mathbf{K} (tenseur du second ordre) du milieu grâce à la loi de Darcy [2] (Eq. 1). Cette procédure d'homogénéisation doit être réalisée sur des VER qui constituent la plus petite géométrie pour laquelle la perméabilité et d'autres caractéristiques associées deviennent indépendantes de la taille du domaine [1, 6].

$$\mathbf{v}_D = - (\mathbf{K} / \mu) \cdot \nabla p_D \quad (\text{Eq. 1})$$

Pour le régime transitoire, schématisé sur la Fig. 1, la physique à modéliser implique l'écoulement dans la structure porale de 2 fluides - vapeur (ou air) et liquide, de viscosité μ_V et μ_L -. De plus, les effets de tension superficielle doivent être pris en compte à l'interface vapeur/liquide (loi de Laplace = saut de contrainte normale) et au point triple (en 2D) ; les effets capillaires du milieu homogène équivalent peuvent atteindre jusqu'à 1/3 de la pression motrice dans les procédés par infusion [5, 7].

2.2 Modélisation numérique

Le cadre numérique, pour modéliser ces écoulements saturés et transitoires de Stokes - Fig. 1 - est décrit par exemple dans [5, 8]. L'approche monolithique utilise des éléments finis mixtes vitesse-pressure P1/P1 stabilisés par une méthode sous-grille (*ASGS*). La condition de Navier et les effets de tension de surface [5] sont également implémentés. Les écoulements transitoires utilisent une méthode *Level-set* [6] pour représenter l'interface mobile liquide/air, avec suffisamment de précision pour intégrer les contributions dues aux tensions de surface qui dépendent des courbures locales. Le couplage des problèmes fluide - *level-set* est séquentiel : la vitesse du fluide est calculée pour une géométrie fixe, elle est ensuite utilisée pour actualiser la position de la *Level-Set* (même schéma EF linéaire que Stokes, étape de convection stabilisée SUPG [5]). Toutes ces méthodes sont implémentées dans l'environnement (Zset) validé sur de nombreux cas-tests [1, 5, 8].

Les VER considérés sont quant à eux générés par une approche spécifiquement mise en place [1] (MIGNUS) pour produire des cellules périodiques dans lesquelles les fibres sont aléatoirement placées, et pour une fraction de fibres donnée (V_f volume de fibre sur volume total). Les rayons de ces fibres sont tirés dans une distribution normale $r = \mathcal{N}(\bar{r}, \sigma_r)$, (\bar{r} est le rayon moyen) et on s'assure que leur distribution finale s'apparente à des distributions mesurées [7]. Ces cellules sont ensuite maillées de façon optimale, avec un nombre d'éléments réduit mais à même d'assurer une représentation fiable des écoulements, y compris dans les régions contraintes. Pour les simulations, des matériaux type ont été considérés (Tab. 1), le rayon de fibre moyen est $\bar{r} = 3.5 \mu\text{m}$.

μ_L (Pa.s)	μ_V (Pa.s)	γ_{LS} (N.m ⁻¹)	γ_{SV} (N.m ⁻¹)	γ_{LV} (N.m ⁻¹)
2.76×10^{-3}	1.71×10^{-5}	54.7×10^{-3}	25.9×10^{-3}	50.8×10^{-3}

Tab. 1. Données matériaux : viscosité μ_i et tension de surface γ_{ij} .

2.3 Transition d'échelle et méthodes d'homogénéisation

Dans les cas saturés, on applique généralement un gradient (différentiel) de pression dans une direction (\mathbf{x} ou \mathbf{y} sur la Fig. 1) et on mesure la vitesse du fluide (flux) à travers les faces dans les deux directions afin d'identifier les composantes correspondantes du tenseur de perméabilité - tenseur pas nécessairement diagonal ni symétrique [8] - par le biais de la loi de Darcy (Eq. 1). Pour les écoulements en régime transitoire, la procédure d'homogénéisation n'est pas aussi standard, et la première question concerne les caractéristiques physiques pertinentes qui peuvent être homogénéisées. La littérature concernant les matériaux composites [3, 7, 11, 12], mais aussi l'hydrogéologie par exemple [8], indiquent que les perméabilités transitoires peuvent être extraites des écoulements transitoires, mais la question générale est la suivante : « Est-il pertinent d'estimer une perméabilité transitoire pour alimenter des simulations simplifiées à l'échelle supérieure ? ». En effet, à condition que des VER statistiquement représentatifs puissent être définis, d'autres descripteurs locaux peuvent être plus pertinents ; par exemple la pression capillaire équivalente agissant globalement sur le front du fluide, ou des caractéristiques plus informatives telles que la saturation dans la VER ou d'autres descripteurs du front de l'écoulement. Dans les 2 régimes, nous

avons utilisé la régression par processus gaussiens anisotropes et l'apprentissage automatique pour capturer le caractère stochastique inhérent à la physique en jeu.

Comme indiqué précédemment, une discontinuité de contrainte capillaire normale apparaît à l'interface liquide-vapeur. Dans un contexte d'homogénéisation, la contribution globale P_{cap} peut caractériser l'action capillaire à une échelle supérieure [13, 14]. Une autre caractéristique clé des écoulements transitoires est la saturation qui représente le rapport entre le volume de fluide et l'espace poral total ($S_L \in [0,1]$). Notons que pour la saturation comme pour P_{cap} , l'interface liquide-vapeur doit être traitée avec soin pour extraire les parties d'interface du front en mouvement, en ignorant les « bulles » piégées dans le réseau de fibres, en aval de l'écoulement - voir Fig. 1 et [13] pour les détails.

3. Résultats

3.1 Ecoulements saturés

Pour les fractions de fibres choisies, de 0,3 à 0,6, des ensembles de 150 microstructures ont été générés avec MIGNUS et étudiées – cf détails dans Geoffre *et al.* [1]. On a pu établir que la taille optimale du VER dépend directement de la fraction de fibres : si V_f varie de 0,3 \rightarrow 0,6, $\ell_{\text{VER}}/\bar{r}$ varie de 100 \rightarrow 60. Plus généralement, une étude statistique a montré que - Fig. 2 - a - :

- le tenseur de perméabilité est symétrique, isotrope et suit une distribution normale pour les VER
- parmi les différents descripteurs morpho-mathématiques, la fraction volumique des fibres porte à elle seule 75 % de l'information statistique
- les perméabilités calculées sont cohérentes avec les modèles de la littérature
- la variabilité de la microstructure induite à la fois par la variabilité du rayon des fibres et par le caractère aléatoire du placement des fibres ne représente que 3 % de la variabilité de la perméabilité.

Ensuite, d'autres paramètres physiques ont été étudiés. L'effet le plus important provient de la longueur de glissement qui représente le « contact » fibre-fluide : entre les limites extrêmes correspondant aux conditions de non-glissement (comme pour dériver Darcy depuis Stokes [5]) et de glissement total, la perméabilité peut varier jusqu'à une décade - Fig. 2 - a. A partir de ces résultats, une expression stochastique explicite décrivant la perméabilité saturée a été proposée, elle est composée de 2 termes : l'un lié à la variabilité intrinsèque induite par le rayon et la variabilité de génération, et l'autre lié à la longueur de glissement :

$$K(V_f, \bar{r}, \ell_s) = \bar{r}^2 \mathcal{N}(1; 3\%) e^{1,18(1-10V_f)} \left[1 - \frac{1-e^{-3,86V_f}}{1+\frac{1}{2}\frac{\bar{r}}{\ell_s}} \right] \quad (\text{Eq. 2})$$

Syerko *et al.* [10] ont publié en 2023 les résultats d'un *benchmark* de perméabilité virtuelle. Sur la Fig. 2-b, les prévisions de notre modèle analytique [1] se comparent assez bien avec les résultats jugés représentatifs par les auteurs (Figure 22 dans [10]) obtenus par des calculs lourds reposant sur un post-traitement de tomographies. À la lumière des résultats de détermination de la taille de nos VER ($\ell_{\text{RVE}}/\bar{r} \gtrsim 80$), K_{xx} (plan d'isotropie (O, x , z) dans [10]) peut être considéré comme fiable, avec des dizaines de fibres ($\approx 250 \bar{r}$) dans la direction de l'écoulement, tandis que K_{zz} peut être questionné ; comme c'est le cas dans [10], puisque seules quelques fibres sont présentes dans cette direction ($\approx 20 \bar{r}$, cf Figures 9 et 15-a dans [10]) et les fractions de fibres varient entre 0,54 et 0,59 (Fig. 2 - b).

3.2 Régime transitoire

Les simulations en régime transitoire ont été conduites sur les mêmes VERs, optimisés en termes de temps de calcul et de représentativité, avec une taille $\ell_{\text{RVE}}/\bar{r} \approx 40$ suffisante pour définir un VE(Statistiquement)R. Nous avons également démontré que l'écoulement transitoire peut être caractérisé par son seul nombre capillaire [3, 6], *i.e.* le rapport entre les effets visqueux et les effets

dus aux tensions de surface : $Ca = \mu_L \|\bar{v}\| / \gamma_{LV}$ avec \bar{v} la vitesse d'entrée imposée dans notre cas. Ceci en faisant varier les viscosités et les tensions de surface, dans la plage $Ca \in [10^{-4}-10^{-1}]$.

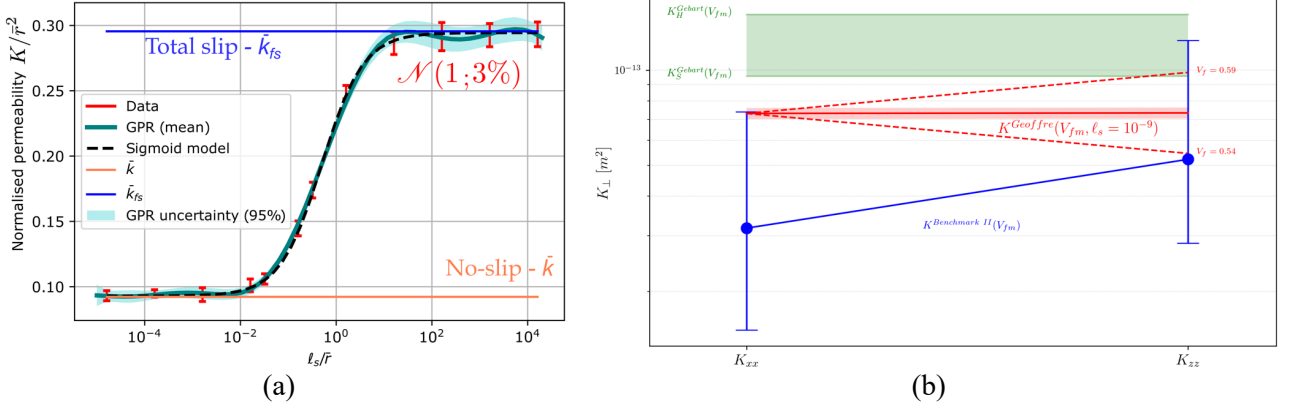


Fig. 2. Résultats de perméabilité saturée: (a) perméabilité stochastique en fonction du glissement normalisé ℓ_s/\bar{r} pour $V_f = 0.3$ (30 VERs à chaque ℓ_s/\bar{r}), et (b) comparaison avec [11] et les résultats de [10]; $V_f = 0,565$

Les résultats révèlent la dynamique de l'infusion – vignettes dans la Fig. 3 – a - et permettent de vérifier que la taille du VESR est suffisante, c'est-à-dire qu'une grande partie du VESR peut être remplie avant que le front d'écoulement n'atteigne la sortie. La saturation globale dépend de Ca (Fig. 3-a) mais pas significativement de la fraction de fibres. De plus, pour nos configurations matérielles, la largeur du « front » de saturation est quantifiée à $\ell_{sat} \approx 8 \bar{r}$.

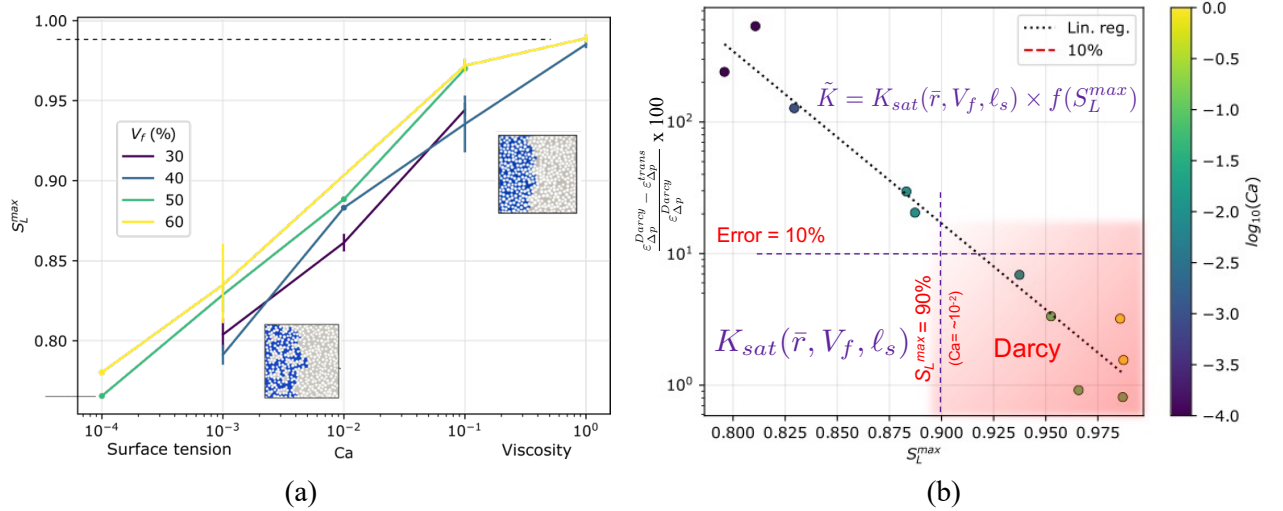


Fig. 3. Saturation en fonction de Ca ($V_f \in [0,3 - 0,6]$) et (b) écart entre Darcy et une représentation complète de l'écoulement, en fonction de la saturation maxi et pour $Ca \in [10^{-4} - 1]$ et $V_f = 0.5$.

En outre, la pression capillaire a pu être estimée par deux méthodes, elle est comparable aux rares mesures expérimentales de la littérature. On a pu également montrer que ces résultats donnent une généralisation du modèle analytique de Ahn [14] avec une dépendance non linéaire connue en fonction de la fraction de fibre, mais en apportant ici une dépendance forte au type d'écoulement, notamment lorsque la viscosité prédomine ($Ca \gtrsim 10^{-3}-10^{-2}$) [13].

Finalement, connaissant la longueur de saturation ($\ell_{sat} \approx 8 \bar{r}$), et la dynamique globale d'imprégnation, on peut estimer si une description complète des écoulements est nécessaire ou bien si une représentation par un écoulement de Darcy transitoire (calculs très légers) est acceptable, connaissant la perméabilité saturée identifiée (Eq. 2). Nous avons montré que, dès lors que le VESR est suffisamment grand, *i.e.* $\ell_{VER} \gg \ell_{sat}$, cette simplification est admissible si $Ca \gtrsim 10^{-2}$,

correspondant à un VER ‘correctement’ saturé ($S_L \gtrsim 85\%$ et vignettes dans la Fig. 3 - a). Dans ce cas, l’erreur, mesurée par exemple comme la différence entre les pressions d’entrée nécessaires pour un même débit entrant est inférieure à 10% entre les représentations complète et simplifiée (Fig. 3 - b).

4. Conclusions

En nous appuyant sur des capacités de simulation très robustes et des approches statistiques fondées, nous avons étudié l’infusion de résine dans des microstructures composites à fibres longues. De nombreux calculs ont permis de définir la taille du VER en régime saturé ($\ell_{\text{VER}}/\bar{r} \in [60 - 100]$) et de proposer une relation stochastique explicite entre la perméabilité et la fraction volumique des fibres, mais qui tient compte également de l’affinité résine-fibre ainsi que de la variabilité de la microstructure induite à la fois par le rayon des fibres et le caractère aléatoire du VER - voir [1]. Des comparaisons avec certains résultats numériques obtenus sur des tomographies, collectés dans un *benchmark* international, donnent des conclusions positives. Deuxièmement, les écoulements transitoires ont été pris en compte, en incorporant tous les effets de tension superficielle qui contrôlent largement ces écoulements. Dans ce cas, le descripteur le plus pertinent de l’écoulement semble être la saturation globale qui dépend du type d’écoulement mais pas de la fraction de volume des fibres. De même, la pression capillaire a été estimée de manière cohérente par deux méthodes, dont les résultats sont conformes à ceux de la littérature et fournissent une extension explicite de certains modèles simplifiés pour divers types d’écoulement. Enfin, la longueur de saturation locale ($\ell_{\text{sat}} \approx 8 \bar{r}$ pour $Ca \in [10^{-4}-10^{-1}]$) établie pour la première fois, est un indicateur précieux qui permet de mesurer la séparation des échelles : la longueur de saturation permet de construire judicieusement des milieux homogènes équivalents ($\ell_{\text{RVE}}/\bar{r} \approx 40$) et de quantifier cette simplification. La portée de ces résultats, exprimés en termes de rayon moyen des fibres, est tout à fait générale.

Références

- [1] A. Geoffre, M. Ghestin, N. Moulin, J. Bruchon, and S. Drapier, “Bounding transverse permeability of fibrous media: a statistical study from random representative volume elements with consideration of fluid slip,” *International Journal of Multiphase Flow*, vol. 143, p. 103751, 2021.
- [2] H. Darcy, *Les fontaines publiques de la ville de Dijon*. Dalmont, 1856.
- [3] V. Michaud, “A Review of Non-saturated Resin Flow in Liquid Composite Moulding processes,” *Transp Porous Media*, vol. 115, no. 3, pp. 581–601, 2016.
- [4] V. Rougier, J. Cellier, M. Gomina, and J. Bréard, “Slip transition in dynamic wetting for a generalized Navier boundary condition,” *J Colloid Interface Sci*, vol. 583, pp. 448–458, 2021.
- [5] L. Chevalier *et al.*, “Accounting for local capillary effects in two-phase flows with relaxed surface tension formulation in enriched finite elements,” *Comptes Rendus - Mécanique*, vol. 346, no. 8, pp. 617–633, 2018.
- [6] M. Sussman, P. Smereka, and S. Osher, “A Level Set Approach for Computing Solutions to Incompressible Two-Phase Flow,” *J Comput Phys*, vol. 114, no. 1, pp. 146–159, 1994.
- [7] T. J. Vaughan, C. T. McCarthy, “A combined experimental-numerical approach for generating statistically equivalent fibre distributions for high strength laminated composite materials,” *Comp.Sc.Tech.*, vol.70, n°2, pp.291–297, 2010.
- [8] S. Whitaker, “Flow in porous media I: A theoretical derivation of Darcy’s law,” *Transp Por Media*, vol. 1(1), pp. 3–25, 1986.
- [9] S. Konangi, N. K. Palakurthi, N. K. Karadimitriou, K. Comer, and U. Ghia, “Comparison of pore-scale capillary pressure to macroscale capillary pressure using direct numerical simulations of drainage under dynamic and quasi-static conditions,” *Adv Water Resour*, vol. 147, p. 103792, 2021.
- [10] E. Syerko *et al.*, “Benchmark exercise on image-based permeability determination of engineering textiles: Microscale predictions,” *Compos Part A Appl Sci Manuf*, vol. 167, p. 107397, 2023.
- [11] B. R. Gebart, “Permeability of Unidirectional Reinforcements for RTM,” *J Compos Mat.*, vol. 26, n° 8, pp. 1100–1133, 1992.
- [12] M. F. Pucci, P. J. Liotier, and S. Drapier, “Capillary wicking in a fibrous reinforcement - Orthotropic issues to determine the capillary pressure components,” *Compos Part A Appl Sci Manuf*, vol. 77, pp. 133–141, 2015.
- [13] A. Geoffre, N. Moulin, J. Bruchon, and S. Drapier, “Reappraisal of Upscaling Descriptors for Transient Two-Phase Flows in Fibrous Media,” *Transp Porous Media*, vol. 147, pp. 345-374, 2023.
- [14] K. Ahn, J. Seferis, and J. Berg, “Simultaneous measurements of permeability and capillary pressure of thermosetting matrices in woven fabric reinforcements,” *Polymer composites*, vol. 12, no. 3, pp. 146–152, 1991.