



HAL
open science

Caractérisation et modélisation des retraits de séchage dans le procédé de microextrusion d'une pâte céramique

Nicolas Lauro

► **To cite this version:**

Nicolas Lauro. Caractérisation et modélisation des retraits de séchage dans le procédé de microextrusion d'une pâte céramique. Matériaux. Université de Limoges, 2023. Français. NNT : 2023LIMO0003 . tel-04094981

HAL Id: tel-04094981

<https://theses.hal.science/tel-04094981>

Submitted on 11 May 2023

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université de Limoges

ED 609 – Sciences et Ingénierie des Matériaux, Mécanique, Énergétique (SIMME)
Institut de Recherche sur les CERamiques – IRCER

Thèse pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université de Limoges
Matériaux céramiques et traitement de surfaces

Présentée et soutenue par

Nicolas LAURO

Le 1^{er} mars 2023

**CARACTÉRISATION ET MODÉLISATION DES RETRAITS DE SÉCHAGE DANS LE PROCÉDÉ DE
MICROEXTRUSION D'UNE PÂTE CÉRAMIQUE**

Thèse dirigée par David SMITH et Arnaud ALZINA

JURY :

Président du jury

Franck ENGUEHARD, Professeur des universités – Institut Pprime – Université de Poitiers

Rapporteurs

Jean-Denis MATHIAS, Directeur de recherche – LISC – INRAE

Maurice GONON, Professeur des universités – Faculté Polytechnique, Mons, Belgique

Examineurs

Franck ENGUEHARD, Professeur des universités – Institut Pprime – Université de Poitiers

Claire PEYRATOUT, Professeur des universités – Université de Limoges

David SMITH, Professeur des universités – Université de Limoges

Arnaud ALZINA, Maître de conférences – Université de Limoges

Invités

Benoît NAIT-ALI, Maître de conférences – Université de Limoges



Remerciements

La thèse de doctorat est un travail long dont la réalisation ne saurait être réduite à l'apport d'une seule personne. Le travail présenté dans ce manuscrit est ainsi l'oeuvre de nombreuses personnes, dont la collaboration a été précieuse dans la réussite de cet exercice. Ce sont certaines de ces personnes que j'aimerais mettre en avant dans ces remerciements.

Je tiens à remercier chaleureusement toutes les personnes qui m'ont aidé pendant l'élaboration de ma thèse et notamment mes encadrants, qui ont chacun su m'apporter leur soutien et leurs connaissances. Tout d'abord mon directeur de thèse, David, dont la grande sagesse et expérience des céramiques m'ont permis d'éviter bien des erreurs et d'avancer avec sérénité dans tous mes projets. Mon co-directeur de thèse, Arnaud, pour m'avoir transmis le goût de la modélisation numérique et de m'avoir permis d'explorer en toute liberté les outils mis à ma disposition. Enfin Benoit pour les nombreuses discussions que nous avons pu avoir au sujet du séchage qui m'ont permis d'avoir l'esprit très clair sur les sujets aussi bien techniques que théoriques.

Ce travail n'aurait pas été possible sans le soutien de l'Université de Limoges, de l'IRCER et de la région Nouvelle-Aquitaine, qui m'ont permis, grâce à diverses aides financières, de me consacrer sereinement à l'élaboration de ma thèse. Je tiens également à remercier la société Imerys pour m'avoir offert leur pâte de porcelaine dédiée à l'impression 3D (Ezprint3D-E).

Ce travail n'aurait pas été mené à bien sans la disponibilité et l'accueil chaleureux que m'ont témoigné les personnels de l'IRCER, en particulier Yann Launay et Marina Soustre dont l'aide m'a été précieuse lors de la fin de ma thèse.

Un grand merci à Francesco et Valentin, avec qui j'ai eu le plaisir de partager mon bureau pendant presque deux ans, pour nos discussions et l'ouverture sur d'autres champs de recherche.

Enfin, je tiens tout particulièrement à remercier ma conjointe, Jodie Antony, pour le support indéfectible qu'elle m'a apporté durant toutes ces années.

Droits d'auteurs

Cette création est mise à disposition selon le Contrat :

« Attribution-Pas d'Utilisation Commerciale-Pas de modification 3.0 France »

disponible en ligne : <http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/3.0/fr/>



Table des Matières

1	Le séchage des pâtes céramiques pour le procédé de micro-extrusion	16
1.1	Principes du séchage	18
1.1.1	Les apports de chaleur	18
1.1.2	L'eau dans le matériau cru	19
1.1.3	Transferts de masse et de chaleur	20
1.1.4	Les échanges avec le milieu extérieur	23
1.1.5	Les étapes du séchage d'un produit céramique	25
1.1.6	Le retrait de séchage	28
1.2	Propriétés thermophysiques impliquées dans le séchage convectif d'une pâte céramique	30
1.2.1	Activité de l'eau	30
1.2.2	Coefficient de diffusion équivalent	31
1.2.3	Chaleur spécifique	31
1.2.4	Conductivité thermique	32
1.3	La micro-extrusion de pâtes céramiques ou robocasting	33
1.3.1	Présentation du robocasting	33
1.3.2	Fonctionnement de la technologie de robocasting	34
1.3.3	Extrusion d'une pâte céramique	38
1.3.4	Orientation des particules lors de l'extrusion	39
1.4	Conclusion	42
2	Modélisation du séchage convectif d'un produit céramique	44
2.1	Construction d'un modèle de séchage convectif pour un produit céramique cru	46
2.1.1	Hypothèses simplificatrices	46
2.1.2	Définition des équations constitutives	47
2.1.3	Définition des conditions aux limites	47
2.1.4	Formulation variationnelle pour le séchage convectif	48

2.2	La méthode lagrangienne actualisée pour la modélisation des variations dimensionnelles	51
2.2.1	Description de la méthode lagrangienne actualisée	51
2.2.2	Prise en compte des variations dimensionnelles liées au retrait de séchage	55
2.3	Résolution numérique du modèle	59
2.3.1	Fonctionnement général de la méthode de résolution	59
2.3.2	Description des étapes de l'algorithme	60
2.4	Validation du modèle	62
2.4.1	Obtention de la température humide	62
2.4.2	Suivi du séchage en fonction du temps	63
2.5	Conclusion	65
3	Mesure des propriétés physiques pour la modélisation du séchage d'une pâte pour le robocasting	66
3.1	Étude de l'influence des conditions extérieures sur le séchage d'un produit céramique	67
3.2	Présentation de la pâte de porcelaine	71
3.2.1	Étude de la taille et de la forme des grains	71
3.2.2	Analyse thermique différentielle et thermogravimétrie	72
3.3	Mesure des propriétés physiques de la pâte de porcelaine	74
3.3.1	Estimation du coefficient de diffusion équivalent	74
3.3.2	Activité de l'eau	78
3.3.3	Mesure du coefficient d'échange par convection	80
3.3.4	Propriétés d'entrée du modèle	81
3.4	Conclusion	83
4	Caractérisation des retraits de séchage dans le procédé de robocasting	84
4.1	Méthodes de mesure des variations dimensionnelles	85
4.1.1	Méthodes pour la mesure du retrait de séchage d'une pâte céramique	85
4.1.2	Méthodes pour la mesure du retrait de produits obtenus par robocasting	87
4.2	Étude des retraits de séchage dans le procédé de robocasting	95
4.2.1	Mesure du retrait sur la pâte de porcelaine	95
4.2.2	Effet de la mise en forme de la pâte	96
4.2.3	Influence des paramètres d'extrusion	103
4.2.4	Influence de l'empilement des cordons	105

4.3	Conclusion	110
5	Étude du retrait de séchage de produits céramiques obtenus par robocasting	111
5.1	Séchage d'un produit céramique obtenu par robocasting	112
5.1.1	Prédiction du séchage sur une pièce avec une cavité	113
5.1.2	Étude du séchage d'une pièce avec une cavité	115
5.1.3	Suivi en temps réel du séchage d'un produit céramique	117
5.2	Utilisation du machine learning pour la détection de la fin du séchage	119
5.2.1	Introduction au machine learning	119
5.2.2	Le Deep Learning appliqué au contrôle du séchage	122
5.2.3	Entraînement du modèle et résultats	124
5.3	Conclusion	128
A	Bibliographie	133
	Références	134
	Liste des travaux	141

Table des Figures

1.1	Concept du volume élémentaire représentatif (adapté de [17]).	21
1.2	Schéma de la couche limite (adapté de [25])	24
1.3	Courbes théoriques du séchage d'un produit céramique	26
1.4	Représentation schématique des différentes étapes de séchage du un corps poreux (adapté de [27])	27
1.5	Courbe de Bigot théorique	30
1.6	Principe schématique du robocasting.	34
1.7	Représentation schématique d'une tête d'extrusion avec entraînement par vis.	35
1.8	Représentation schématique d'un réservoir de pâte sous pression.	36
1.9	Représentation schématique d'une tête d'extrusion avec entraînement par piston.	36
1.10	Structure schématique en 2D d'une imprimante de type cartésienne.	37
1.11	Structure schématique en 2D d'une imprimante de type delta.	38
1.12	Profils de vitesse pour un écoulement en bloc (à gauche) et un écoulement laminaire (à droite), adapté de [46]	39
1.13	Représentation schématique de l'orientation des grains anisométriques dans un cordon	40
2.1	Schématisme du principe de résolution par évolution incrémentale de la géométrie.	52
2.2	Configurations de référence.	53
2.3	Exemple d'une courbe de Bigot obtenue sur une pâte de porcelaine.	56
2.4	Courbes de retrait de séchage par rapport à la longueur initiale présentées en fonction de la teneur en eau base sèche.	57
2.5	Schématisme simplifiée de l'algorithme de résolution.	59
2.6	Schématisme de la géométrie et des conditions limites pour la simulation.	63
2.7	Comparaison de la cinétique de séchage d'un bloc d'alumine : expérimental vs modèle	64

3.1	Teneur en eau en base sèche et température de surface pendant le séchage pour différentes valeurs de h avec un air de séchage à 30°C et 50% HR.	68
3.2	Teneur en eau en base sèche pendant le séchage pour différentes valeurs de HR avec un air de séchage à 30°C.	69
3.3	Teneur en eau en fonction du temps, à 9 positions différentes dans la hauteur de l'échantillon, avec un air de séchage à 40°C et 22,5% HR. La courbe supérieure correspond à la base de l'échantillon. La courbe inférieure correspond à la surface exposée au séchage.	70
3.4	Images obtenues au MEB environnemental sur un échantillon de pâte EZPrint3D-E.	71
3.5	Résultat de l'analyse granulométrique de la pâte EZPrint3D-E en volume.	72
3.6	Résultats de l'analyse thermique différentielle et thermogravimétrique sur un échantillon de pâte EZPrint3D-E	73
3.7	Représentation schématique de l'échantillon utilisé pour la mesure du coefficient de diffusion équivalent.	74
3.8	Évolution du profil de teneur en eau dans l'échantillon.	76
3.9	Évolution du coefficient de diffusion équivalent D_w en fonction de la teneur en eau dans le matériau obtenue expérimentalement et loi empirique utilisée pour la modélisation.	78
3.10	Représentation schématique du montage pour la mesure de l'activité de l'eau.	79
3.11	Courbes obtenues suite à la mesure de l'activité de l'eau sur la pâte EZPrint3D-E	79
3.12	Loi empirique utilisée pour estimer l'activité de l'eau en fonction de la teneur en eau du matériau.	80
3.13	Représentation schématique du montage pour la mesure de coefficient d'échange par convection h	81
4.1	Représentation schématique du montage pour la mesure de retrait linéaire	86
4.2	Représentation schématique de l'échantillon pour le suivi de marqueur .	87
4.3	Représentation schématique du montage expérimental pour le suivi du retrait de séchage sur un cordon.	88
4.4	Images de cordons obtenues avec les caméras pour le suivi du retrait de séchage.	88

4.5	Étapes de pré-traitement d'une image de cordon : exemple d'une image pour la mesure longitudinale.	89
4.6	Image d'un cordon traitée pour la mesure de sa longueur.	89
4.7	Image de cordon traitée pour la mesure automatique du diamètre par des marqueurs virtuels.	90
4.8	Représentation schématique du montage expérimental pour la mesure du retrait sur un empilement de cordons	91
4.9	Images d'un empilement de cordons obtenues avec la caméra pour la mesure du retrait radial.	91
4.10	Images d'un empilement de cordons obtenues avec la caméra pour la mesure du retrait longitudinal	92
4.11	Représentation schématique du montage expérimental pour le suivi du retrait sur une pièce	92
4.12	Exemple d'image d'un produit utilisée pour la détection automatique de cordons	93
4.13	Étapes de pré-traitement d'une image d'un produit.	94
4.14	Image d'un produit après pré-traitement et analyse par l'Algorithme 4	95
4.15	Mesure du retrait de la pâte de porcelaine en fonction de sa teneur en eau.	96
4.16	Image du cordon utilisé pour l'étude de l'effet de l'extrusion sur le retrait de la pâte	97
4.17	Retrait dans les directions radiale et longitudinale du cordon en fonction du temps	97
4.18	Coupe schématique d'un cordon dans la direction longitudinale (axe x) montrant la distribution et l'orientation des grains durant le séchage	98
4.19	Images MEB d'un cordon de pâte de porcelaine EZPrint3D-E	99
4.20	Représentation schématique d'un pont liquide et des forces exercées sur les grains	99
4.21	Résultats de l'expérience du séchage du cordon déposé sur de l'huile	100
4.22	Image du cordon utilisé pour l'étude de l'effet de l'écrasement sur le retrait de la pâte	101
4.23	Retrait dans les directions radiale et longitudinale du cordon écrasé en fonction du temps	101
4.24	Images du cordon écrasé de pâte de porcelaine EZPrint3D-E au cours de son séchage	102
4.25	Retrait final dans la direction radiale des cordons à différentes vitesses d'extrusion	104

4.26 Retrait final des cordons extrudés avec des buses d'extrusion de diamètres différents	105
4.27 Exemple d'image obtenue lors de l'étude d'un empilement, avec numérotation des cordons	106
4.28 Retrait final de chacun des trois cordons de l'empilement dans les directions X et Z	107
4.29 Représentation schématique de l'empilement utilisé pour l'étude du retrait de séchage sur les cordons éloignés du support	108
4.30 Retrait final selon Z des 8 ^{ème} et 9 ^{ème} cordons pour chacun des échantillons en fonction du nombre de cordons empilés dessus. Les barres d'erreurs représentent l'incertitude de mesure.	108
4.31 Représentation schématique des forces appliquées à une couche lors de l'impression de la couche suivante	109
5.1 Maillage d'une tour de 40x20x40 mm ³ présentant une cavité utilisée pour la prédiction du séchage.	113
5.2 Résultat de l'étude de convergence de la géométrie	114
5.3 Suivi du retrait lors de la prédiction du séchage de la pièce à l'air ambiant (temps de calcul : 4h 14min)	115
5.4 Suivi du retrait expérimental de séchage de la pièce à l'air libre (18°C et 55% HR).	116
5.5 Suivi expérimental et prédiction du retrait de séchage de la pièce à l'air libre.	117
5.6 Schéma présentant le fonctionnement de la méthode de suivi du retrait de séchage de pièces obtenus par robocasting en temps réel.	118
5.7 Suivi du retrait de séchage en temps réel lors du séchage d'une pièce dans une enceinte climatique (30°C et 40% HR).	119
5.8 Schématisation des étapes du développement d'un programme de machine learning.	120
5.9 Schématisation du fonctionnement d'un neurone artificiel (adapté de [64]).	121
5.10 Schématisation d'un réseau de neurones artificiels (ANN).	122
5.11 Images de la surface d'une pièce obtenue par robocasting.	123
5.12 Représentation schématique du modèle CNN développé pour l'analyse des images.	124
5.13 Exemples d'images utilisées pour l'entraînement du modèle et présentant ou non un film d'eau à la surface du produit.	125

5.14 Évolution de la fonction de perte et de la précision du modèle sur le jeu d'entraînement.	126
5.15 Matrice de confusion des prédictions du modèle sur le jeu de test. Les valeurs sur la diagonale $y=x$ donnent les erreurs de prédiction.	126

Introduction

DEPUIS plusieurs années, la fabrication additive se démarque des autres procédés de fabrication céramique par sa versatilité et sa capacité à mettre en forme des produits précédemment pensés impossibles à réaliser. De nombreuses techniques de fabrication additive céramique ont été développées, souvent adaptées de technologies existantes pour d'autres familles de matériaux. Le procédé de micro-extrusion de pâtes céramiques, plus souvent appelé Robocasting, a été développé à la fin des années 1990 en prenant inspiration des procédés de FDM (Filament Deposition Method) pour les polymères et dans le but d'obtenir une machine de fabrication libre de pièces céramique.

Le robocasting s'est rapidement développé pour devenir aujourd'hui l'une des technologies d'impression 3D céramique de référence. À ses débuts, le procédé était majoritairement utilisé pour du prototypage rapide de pièces céramiques. Les évolutions techniques issues du travail de recherche de ces dernières années, en termes de formulation et d'optimisation du procédé, ont cependant permis au robocasting de se développer vers la production de produits finis. Cette technique de fabrication additive est utilisée dans de nombreux domaines, de la céramique technique à la céramique traditionnelle. Un grand nombre d'études portent par exemple sur l'impression d'implants osseux en s'appuyant sur la capacité du robocasting à obtenir des pièces à porosité

contrôlée à partir de céramiques biocompatibles [1], [2]. L'impression de céramiques piezo électriques de structures complexes fait également l'objet de beaucoup d'intérêt [3]. Un des avantages majeurs du robocasting réside dans la taille des produits qu'il est possible de fabriquer, ainsi une entreprise Limougeaude, Biopythos, l'utilise pour l'impression de jarre en grès de plusieurs centaines de litres pour le vieillissement du vin.

Le robocasting est une technologie versatile, à la fois en ce qui concerne le choix des matériaux et la forme des produits, cependant la nécessité d'utiliser une pâte, dont la teneur en eau se situe aux alentours de 30%, pour la mise en forme fait qu'elle n'est pas exempt des étapes de fabrication classiques des céramiques. Ainsi tout produit obtenu doit être séché pour atteindre une teneur en eau entre 1 et 2% avant le traitement thermique qui lui permettra d'atteindre ses propriétés mécaniques finales. Cette étape de séchage nécessite un soin particulier car le risque de voir apparaître un défaut, si les conditions de séchage ne sont pas maîtrisées, est important. Les défauts les plus couramment observés lors du séchage de produits céramiques sont des déformations et des fissures, qui sont généralement dues à une vitesse de séchage trop importante résultant en l'apparition de forts gradients de teneur en eau et en un retrait hétérogène. Une particularité du procédé de robocasting est que cette étape de séchage intervient durant la fabrication de la pièce ce qui rend son contrôle particulièrement difficile. De plus, cette technologie offrant une grande liberté dans le choix de la géométrie des produits, l'impression de pièces de formes complexes apporte une difficulté supplémentaire dans la maîtrise dimensionnelle du produit lors de cette étape. L'étude du séchage pour les produits obtenus par robocasting est nécessaire pour la maîtrise du retrait, afin d'éviter l'apparition de défauts tout en optimisant le procédé au niveau de sa durée et de sa consommation énergétique.

Les travaux présentés dans cette thèse ont pour vocation l'amélioration de la compréhension et de la maîtrise des retraits de séchages de produits céramiques, en particulier ceux obtenus par robocasting. Avec cet objectif en tête, les travaux effectués se divisent en deux axes complémentaires. Le premier porte sur la construction d'un modèle numérique robuste du séchage convectif de produits céramiques, prenant en compte à la fois le couplage entre les transferts de masse et de chaleur, mais aussi les variations dimensionnelles liées au retrait de séchage. Afin d'obtenir des prédictions réalistes, le modèle aura besoin d'être alimenté avec les propriétés thermo-physiques, souvent dépendantes de la teneur en eau. Le deuxième axe de travail porte sur la

mesure et le suivi du retrait de séchage de produits obtenus par robocasting. Pour cela, plusieurs techniques innovantes basées sur des mesures optiques non-destructives ont été développées, permettant ainsi l'étude de produits à différentes échelles pendant leur séchage. Ces techniques ont permis d'obtenir une meilleure compréhension des phénomènes prenant place lors du séchage ainsi que leurs causes probables.

Cette thèse est organisée de la façon suivante :

Le chapitre 1 débute par la présentation de l'état de l'art concernant le séchage des céramiques crues. Les différentes formes d'eau présentes dans une céramique crue ainsi que les mécanismes d'apport de chaleur pour son évaporation sont présentés. Une description mathématique des échanges de masse et de chaleur impliqués dans le séchage convectif est ensuite détaillée. À partir de ces connaissances, le cas du séchage de produits céramiques crus est étudié et une attention particulière est portée au retrait de séchage. Les propriétés thermo-physiques jouant un rôle important dans le séchage sont détaillées dans le but d'offrir une meilleure compréhension du procédé. Enfin, le procédé de robocasting est présenté, en prenant soin de décrire le comportement de la pâte lors de l'extrusion.

Le chapitre 2 détaille la construction d'un modèle numérique par éléments finis du séchage convectif. Dans un premier temps, un modèle multiphysique couplant les transferts de masse et de chaleur est présenté, puis ce modèle est complété par une méthode numérique permettant de faire évoluer la géométrie pour modéliser le retrait de séchage du produit. Enfin le modèle est validé en comparant ses prédictions à des résultats expérimentaux extraits de la littérature pour une pâte d'alumine.

Le modèle est mis à profit dans le chapitre 3 pour étudier l'influence des conditions extérieures sur le séchage d'un produit céramique. Le reste de l'étude portera sur une pâte de porcelaine commercialisée par Imerys pour les applications de robocasting. Les caractéristiques principales de la pâte sont présentées, avant de détailler les mesures réalisées pour obtenir une estimation de son coefficient de diffusion équivalent et l'activité de l'eau. Enfin des valeurs du coefficient d'échange par convection sont mesurés dans les différents environnements de séchage utilisés durant la thèse.

Le chapitre 4 présente des méthodes innovantes pour la mesure des retraits de séchage de produits céramiques de différentes tailles obtenus par robocasting. Le séchage de

produits imprimés est ensuite étudié dans différentes configurations afin de comprendre comment cette méthode de mise en forme influence le comportement au séchage. Le chapitre 5 commence par l'étude du séchage d'une pièce de taille centimétrique dont le comportement expérimental est comparé aux prédictions réalisées avec le modèle numérique. Ensuite, le chapitre aborde le développement de méthodes pour identifier la fin du retrait lors du séchage. Pour cela, une première méthode qui consiste à suivre en temps réel de l'étape de séchage d'un produit obtenu par robocasting sera présentée. La deuxième méthode est basée sur le machine learning qui sera d'abord brièvement introduit et mis en application dans une preuve de concept pour la création d'un outil de détection de la fin du retrait.

1

Le séchage des pâtes céramiques pour le procédé de micro-extrusion

Sommaire

1.1	Principes du séchage	18
1.1.1	Les apports de chaleur	18
1.1.2	L'eau dans le matériau cru	19
1.1.3	Transferts de masse et de chaleur	20
1.1.4	Les échanges avec le milieu extérieur	23
1.1.5	Les étapes du séchage d'un produit céramique	25
1.1.6	Le retrait de séchage	28
1.2	Propriétés thermophysiques impliquées dans le séchage convectif d'une pâte céramique	30
1.2.1	Activité de l'eau	30
1.2.2	Coefficient de diffusion équivalent	31
1.2.3	Chaleur spécifique	31
1.2.4	Conductivité thermique	32
1.3	La micro-extrusion de pâtes céramiques ou robocasting	33
1.3.1	Présentation du robocasting	33

Chapitre 1 – Le séchage des pâtes céramiques pour le procédé de micro-extrusion

1.3.2	Fonctionnement de la technologie de robocasting	34
1.3.3	Extrusion d'une pâte céramique	38
1.3.4	Orientation des particules lors de l'extrusion	39
1.4	Conclusion	42

L'OBJECTIF de ce chapitre est de présenter l'état de l'art général, tel qu'il peut être trouvé dans la littérature, concernant le séchage de produits céramiques et le procédé de micro-extrusion de pâtes céramiques.

1.1 Principes du séchage

La plupart des procédés de fabrication d'objets en céramique nécessitent l'utilisation d'une pâte ou d'une suspension pour donner sa forme au produit. À l'issue de la mise en forme, il est nécessaire de retirer l'eau présente dans le matériau avant de procéder à l'étape de cuisson. En effet, si de l'eau est présente à l'intérieur du matériau lors de cette étape, celle-ci se vaporise brutalement et ce phénomène engendre des contraintes due à la vapeur d'eau qui risquent de faire éclater le produit. Dans cette thèse nous nous sommes intéressés uniquement au séchage où l'eau est retirée par évaporation, qui est le procédé le plus utilisé dans l'industrie céramique.

1.1.1 Les apports de chaleur

Le séchage d'un matériau céramique nécessite un apport de chaleur. Celle-ci est utilisée pour faire passer l'eau de l'état liquide à l'état gazeux, dont l'enthalpie de vaporisation est de 2500 kJ.kg^{-1} à 0°C . Il existe trois modes pour transférer la chaleur : la conduction, la convection et le rayonnement. Dans la réalité, les procédés de séchage combinent souvent deux ou trois de ces modes de transfert. Chacun de ces modes et leur utilité dans le procédé de séchage est décrit ci-dessous :

- **Transfert de chaleur par conduction** : la chaleur est transmise au sein d'un solide ou d'un fluide en présence d'une différence de température et en l'absence de mouvement macroscopique. Dans le cas du séchage, la chaleur nécessaire à l'évaporation de l'eau peut par exemple être apportée par contact entre le matériau et une surface chaude.
- **Transfert de chaleur par convection** : la chaleur est transmise entre l'objet et son environnement par le mouvement d'un fluide. La chaleur nécessaire à l'évaporation de l'eau est apportée par un air chaud qui balaye la surface humide du matériau. L'eau qui a été évaporée est transportée loin de la surface par les mouvements de l'air. On distingue deux régimes de convection : la convection naturelle et la convection forcée. Le premier où les mouvements de l'air sont causés par les différences de densité dans la phase gazeuse, liées à la présence d'un gradient de température ; ceci peut être le cas par exemple au voisinage de la surface exposée au séchage. Le second où le flux d'air est induit par un facteur extérieur, un ventilateur par exemple.
- **Transfert de chaleur par rayonnement** : la chaleur est transmise par rayonnement électromagnétique qui est absorbé en surface ou en profondeur selon la longueur d'onde du rayonnement. Lors d'un séchage à 20°C ce phénomène est négligeable, cependant plus la température augmente plus sa contribution est importante.

Cette étude se concentre particulièrement sur le séchage par convection, celui-ci étant le plus utilisé dans l'industrie céramique dû à sa facilité de mise en oeuvre et son efficacité prouvée. Si le séchage convectif a pour but de retirer l'eau du matériau, il est important de comprendre comment cette dernière est distribuée dans le matériau.

1.1.2 L'eau dans le matériau cru

La quantité d'eau présente dans le matériau est quantifiée par une grandeur appelée la teneur en eau. Pour l'étude du séchage, on rencontre dans la littérature deux manières de la calculer :

- Teneur en eau base humide : la teneur est calculée par rapport à la masse totale du matériau (solide + eau initiale). Elle s'exprime avec la formule suivante :

$$X' = \frac{m(t) - m_{seche}}{m_{init}} \quad (1.1)$$

- Teneur en eau base sèche : la teneur est calculée par rapport à la masse finale de solide du matériau. On l'obtient en divisant la masse d'eau présente dans le matériau par la masse de l'échantillon complètement sec :

$$X = \frac{m(t) - m_{seche}}{m_{seche}} \quad (1.2)$$

où X' est la teneur en eau base humide, X est la teneur en eau base sèche, $m(t)$ est la masse de l'échantillon au temps t , m_{init} est la masse initiale de l'échantillon, et m_{seche} est la masse finale de l'échantillon, c'est à dire après séchage dans une étuve entre 105 et 110°C, jusqu'à masse constante [4].

Les matériaux céramiques, surtout avant leur cuisson, sont composés de grains avec lesquels l'eau présente dans le matériau interagit. Il est donc possible de distinguer deux types d'eau dans une céramique crue : l'eau libre et l'eau liée [5]. L'eau libre a une pression de vapeur d'équilibre égale à la pression de vapeur saturante. Elle peut se déplacer dans les pores du matériau lors du séchage et elle est la plus facile à évaporer du matériau par apport de chaleur. L'eau liée est celle pour laquelle la pression de vapeur d'équilibre est inférieure à la pression de vapeur saturante [6] et nécessite donc un plus grand apport de chaleur pour être extraite.

1.1.3 Transferts de masse et de chaleur

Les transferts de masse et de chaleur dans les solides poreux sont des phénomènes complexes et étudiés depuis presque 200 ans. L'approche de ces problèmes sous la forme d'équations différentielles a commencé avec la formulation des transferts de chaleur par conduction par Fourier en 1822 [7]. Les transferts de masse dans les solides poreux et continus ont été décrits de la même manière vers le milieu du 19ème siècle [8], [9]. Ces avancées ont permis l'apparition d'une approche scientifique du séchage au 20ème siècle. Différentes descriptions du séchage ont été proposées par Lewis en 1921 [10], Sherwood en 1929 [11] et Ceaglske et Hougen en 1937 [12]. Dans les années 1950, les premiers systèmes d'équations décrivant le séchage sont proposés, notamment dans les travaux de Krischer [13] et Philip et de Vries [14]. C'est en 1977 que Whitaker [15] a publié une nouvelle manière de modéliser les transferts de masse et de chaleur dans les solides poreux. Il obtient une description macroscopique du problème de séchage à partir de bilans de conservation à l'échelle microscopique en utilisant une technique de moyennage volumique publiée par Slattery [16].

Deux méthodes sont retrouvées dans la littérature pour mettre en équation les transferts de masse et de chaleur dans un matériau poreux. La première approche consiste à faire la description la plus exhaustive des mécanismes responsables des transferts et la seconde consiste à regrouper tous les mécanismes dans une équation en posant des hypothèses simplificatrices. Ces deux descriptions sont décrites dans le cas des transferts de masse dans la suite de cette partie.

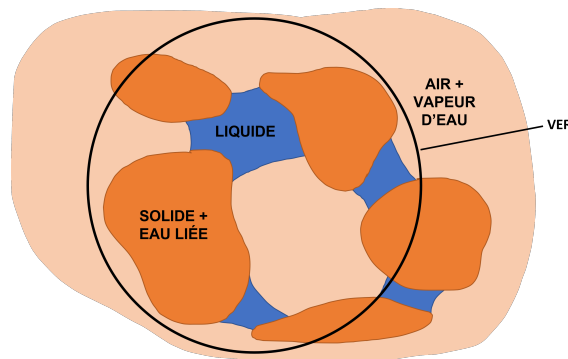


Figure 1.1: Concept du volume élémentaire représentatif (adapté de [17]).

L'approche exhaustive pour la mise en équation des transferts de masse débute par l'identification des phases susceptibles de donner lieu à un transfert de masse [17]. Pour cela, un volume élémentaire représentatif (VER) est défini à l'échelle microscopique (Fig. 1.1), ce qui permet de définir ces phases. Ainsi, quatre phases sont distinguées : l'eau liquide libre (ρ_f), l'eau liée (ρ_b), la vapeur d'eau (ρ_v) et l'air. La teneur en eau dans le VER s'exprime alors :

$$\rho_m = \rho_f + \rho_b + \rho_v \quad (1.3)$$

avec ρ exprimée en kg.m^{-3} . Pour chacune des phases, et selon les mécanismes physiques mis en jeu, les lois décrivant les flux de masse sont identifiées. La migration par capillarité à travers les pores (incluant un effet de la gravité) peut être associée à l'eau libre, la vapeur et l'air. Les flux sont alors décrits par un gradient de pression selon la loi de Darcy :

$$\vec{J} = -\frac{k}{\mu}(\vec{\nabla}P - \rho\vec{g}) \quad (1.4)$$

où \vec{J} est le flux de liquide en unité de volume par unité de surface et par unité de temps en m.s^{-1} , P est la force par unité de surface du liquide en Pa, μ est la viscosité du liquide en Pa.s et k est la perméabilité en m^2 .

La diffusion à travers les pores du matériau est également un mécanisme responsable de transferts pour les phases de vapeur, d'air et d'eau liée. Les flux peuvent donc être décrits par la loi de Fick :

$$\vec{J} = -D\vec{\nabla}C \quad (1.5)$$

où D est le coefficient de diffusion en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$, et C est la concentration en eau en $\text{mol}.\text{m}^{-3}$. Une fois les lois décrivant les flux pour chacune des phases identifiées, les équations de conservation de la masse pour chacune des phases sont posées. Des simplifications peuvent alors permettre d'obtenir des équations du transfert de masse dans un solide poreux adaptées à différentes situations [15], [16], [18]–[20].

La deuxième approche, plus phénoménologique, consiste à poser un certain nombre d'hypothèses simplificatrices sur les mécanismes de transport des fluides dans le solide poreux :

- l'effet de la gravité sur le flux d'eau libre, de vapeur et d'air est négligé,
- les flux de vapeur et d'air dus à des gradients de pression dans la phase gazeuse sont négligés,
- la pression capillaire n'est fonction que de la teneur en eau,
- absence de gradient de température,
- aux faibles teneurs en eau, la teneur en eau vaut la teneur en eau liée,
- le coefficient de diffusion de l'eau liée est nul lorsque le solide contient de l'eau libre.

Avec ces hypothèses, le problème de transfert de la masse dans un solide poreux peut être réduit à une équation basée sur la loi de Darcy :

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} = \vec{\nabla} \left[-d_w \left(\frac{k_l}{\mu_l} \right) \left(\frac{\partial P_c}{\partial \rho_m} \right) - d_v^{sat} D_{eff} \frac{\partial HR}{\partial \rho_m} + D_b \right] \vec{\nabla} \rho_m \quad (1.6)$$

où D_b est le coefficient de diffusion de l'eau liée, k_l est la perméabilité du liquide, D_{eff} est le coefficient de diffusion de la vapeur et de l'air, d_v^{sat} est la masse volumique de la vapeur saturée, d_w est la masse volumique de l'eau liquide, HR est l'humidité relative et μ_l est la viscosité de l'eau liquide.

Le terme entre crochet est souvent simplifié en un coefficient de diffusion équivalent D_w qui varie avec la teneur en eau locale du matériau et qui tient donc compte de l'ensemble des mécanismes de transfert de masse dans le solide. Dans les travaux présentés ici, nous utiliserons cette description phénoménologique pour décrire les

transferts de masse dans un solide poreux.

Des approches similaires peuvent être adoptées pour décrire les transferts de chaleur dans un solide poreux. L'équation utilisée pour les modéliser est la loi de Fourier qui correspond à la conduction de la chaleur dans un système isotrope. Elle s'écrit :

$$\vec{Q} = -\lambda \vec{\nabla} T \quad (1.7)$$

où \vec{Q} est le flux de chaleur en W.m^{-2} , T est la température en K et λ est la conductivité thermique en $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$.

1.1.4 Les échanges avec le milieu extérieur

Si l'on considère une surface d'eau libre exposée à l'air, la vitesse d'évaporation sera fonction de la température (T_{air}), de l'humidité relative (HR) et de la vitesse de l'air. L'humidité relative de l'air peut être calculée par la formule suivante :

$$HR = \frac{p_v}{p_s} \quad (1.8)$$

où p_v est la pression partielle de vapeur d'eau dans l'air et p_s est la pression de vapeur saturante à la température de l'air. Cette pression peut être calculée à partir de la relation d'Antoine [21] :

$$\log_{10} P_s(T) = A - \frac{B}{T + C - 273,15} \quad (1.9)$$

où T est la température en K et $P_s(T)$ est la pression de vapeur saturante en bar. Les valeurs de A , B et C peuvent être trouvées dans la littérature [21]. L'humidité relative décrit donc le taux de saturation de l'air en vapeur d'eau. On distingue alors deux cas de figure :

- Si $HR = 100\%$, l'air est complètement saturé en vapeur d'eau ce qui veut dire qu'il est en équilibre avec la phase liquide, et que l'eau ne peut pas s'évaporer.
- Si $HR < 100\%$, l'eau peut s'évaporer et passer de la phase liquide à la phase gazeuse en se diffusant dans l'air.

Dans le cas du séchage convectif d'un produit céramique, le comportement de la surface exposée à l'air est plus complexe. Il est donc important de s'intéresser aux échanges

entre la surface et son environnement. Une simplification des échanges prenant place au voisinage de la surface exposée au séchage a été proposée par plusieurs auteurs [22], [23]. Lorsqu'un solide poreux humide est en contact avec l'air, un film fin est présent à sa surface que l'on appelle la couche limite, schématisée sur la Fig 1.2. Il s'agit d'une zone dans laquelle des gradients de température et de concentration en eau sont observés. L'épaisseur de la couche limite est définie comme la hauteur (H) à laquelle $\frac{C_{s-c.l} - C_{c.l}(H)}{C_{s-c.l} - C_{air}} = 0,99$, où $C_{s-c.l}$ est la concentration en vapeur d'eau dans la couche limite juste au dessus de la surface en mol.m^{-3} , C_{air} est la concentration en vapeur d'eau dans l'air loin de la couche limite, et $C_{c.l}(H)$ est la concentration en vapeur d'eau dans la couche limite [23]. C'est à travers la couche limite que se font les transferts d'eau et de chaleur entre l'air de séchage et le solide [24].

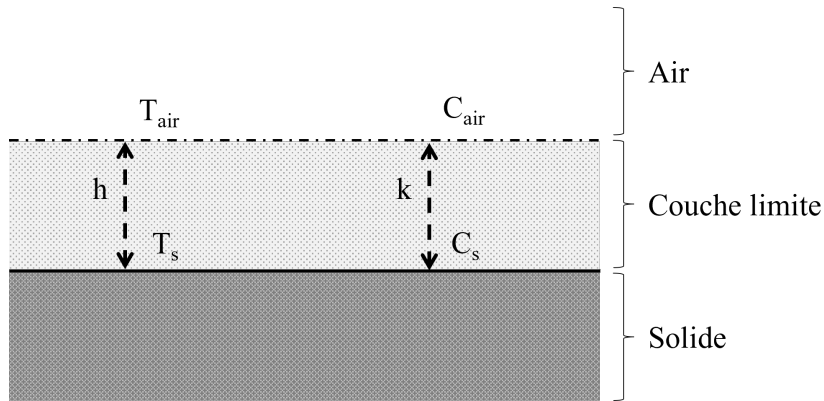


Figure 1.2: Schéma de la couche limite (adapté de [25])

Le flux de masse (\vec{J}) à la surface exposée au séchage convectif est donné par :

$$-\vec{J} \cdot \vec{n} = k(C_{air} - C_s) \quad (1.10)$$

où \vec{n} est le vecteur unitaire normal sortant de la surface exposée au séchage et k est le coefficient de transfert de masse en m.s^{-1} . Les deux teneurs en vapeur d'eau peuvent être liées à la pression de vapeur saturante en utilisant la loi des gaz parfaits :

$$\begin{cases} C_{air} = HR \frac{P_s(T_{air})}{RT_{air}} \\ C_s = a_w \frac{P_s(T_s)}{RT_s} \end{cases} \quad (1.11)$$

où HR est l'humidité relative de l'air, a_w est l'activité de l'eau à la surface exposée au séchage, R est la constante des gaz parfaits, et P_s est la pression de vapeur saturante de l'eau à T_{air} ou T_s , qui peut être calculée en utilisant la relation d'Antoine (Eq. 1.9).

Pour le transfert de chaleur à la surface exposée au séchage, le flux de chaleur fait intervenir deux termes. Le premier rend compte de l'échange par convection via la loi de Newton. Le deuxième terme permet de prendre en compte l'enthalpie de vaporisation de l'eau en fonction du flux d'eau évaporée. Le flux de chaleur (\vec{Q}) à la surface est donné par :

$$-\vec{Q} \cdot \vec{n} = h(T_{air} - T_s) - \vec{J} \cdot \vec{n} (L_w(T_s)M_w) \quad (1.12)$$

où h est le coefficient d'échange par convection, T_{air} est la température de l'air, T_s est la température à la surface du produit, M_w est la masse molaire de l'eau, et L_w est l'enthalpie de vaporisation de l'eau. Le coefficient de convection h est un nombre qui dépend du régime de convection de l'air, de la vitesse de l'air et de la température de la surface.

Puisque les transferts de masse et de chaleur ont lieu dans la couche limite et par le même mécanisme physique (diffusion), les coefficients de transfert de masse et de chaleur sont liés par le nombre de Lewis Le à travers l'équation suivante :

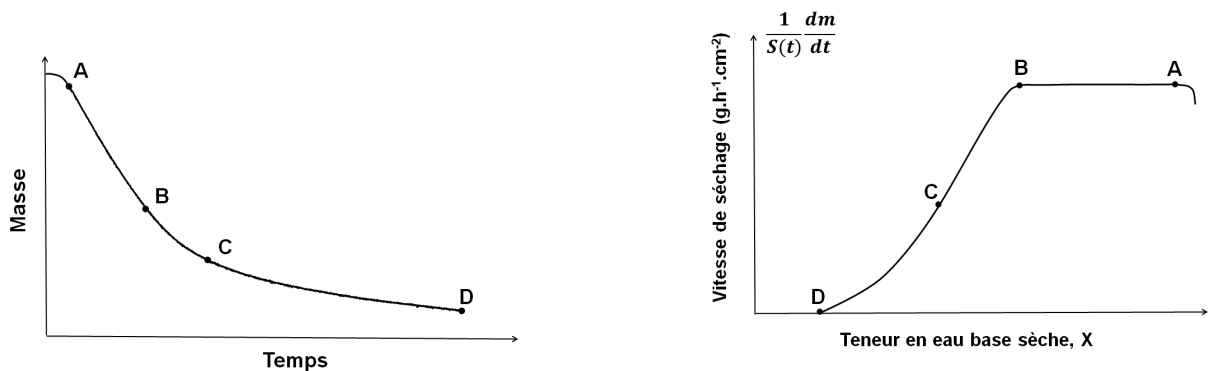
$$k = \frac{h}{\rho_a C p_a Le^{\frac{2}{3}}} \quad (1.13)$$

où ρ_a est la masse volumique de l'air, $C p_a$ est la capacité thermique massique de l'air, et Le est le nombre de Lewis, que l'on peut considérer égal à 1 pour un mélange d'air et de vapeur d'eau [26].

1.1.5 Les étapes du séchage d'un produit céramique

Le séchage d'un produit céramique peut facilement être suivi par une mesure de masse en fonction du temps, comme présenté sur la Fig 1.3(a).

Comme indiqué sur la Fig 1.3(a), le séchage d'un produit céramique dans des conditions de séchage constantes (température, humidité relative et vitesse de l'air) présente plusieurs étapes distinctes. Ces étapes se distinguent très facilement sur un graphique représentant la vitesse de séchage en fonction de la teneur en eau (en base sèche) du produit céramique, comme illustré sur la Fig 1.3(b). Ainsi, nous distinguons, après un régime transitoire de mise à l'équilibre, 3 étapes de séchage :



(a) Évolution de la masse d'un produit pendant l'étape de séchage

(b) Évolution de la vitesse de séchage d'un produit céramique en fonction de sa teneur en eau durant le séchage

Figure 1.3: Courbes théoriques du séchage d'un produit céramique

- A → B : le séchage débute par une étape où la perte de masse est linéaire. Il s'agit de l'étape de séchage à vitesse constante ou CRP (Constant Rate Period).
- B → C : à une teneur en eau donnée la vitesse de séchage commence à décroître pour entrer dans une première période de séchage à vitesse décroissante ou 1stFRP (Falling Rate Period). Durant cette étape la vitesse de séchage varie linéairement avec la teneur en eau.
- C → D : le séchage des dernières traces d'humidité dans le produit amène la vitesse de séchage à décroître de manière non-linéaire. Il s'agit de la deuxième étape de séchage à vitesse décroissante ou 2ndFRP.

Afin de mieux comprendre l'origine de ces différentes étapes de séchage, représentées sur la Fig. 1.4, il faut s'intéresser à la distribution de l'eau au sein d'un solide poreux pendant le séchage [27]. Ce phénomène est connu et étudié depuis presque un siècle avec le travail de Sherwood [11].

La période de séchage à vitesse constante ou CRP

Cette étape tient son nom du fait que la vitesse d'évaporation par unité d'aire de la surface exposée au séchage est indépendante du temps [28], [29]. La vitesse d'évaporation de l'eau dans le solide est proche de celle d'une surface d'eau libre. On considère donc que la surface du solide est couverte par un film d'eau pendant cette étape de séchage, au dessus duquel se trouve la couche limite. L'évaporation de l'eau provoque le refroidissement de la surface du matériau. Si le seul mode de transfert

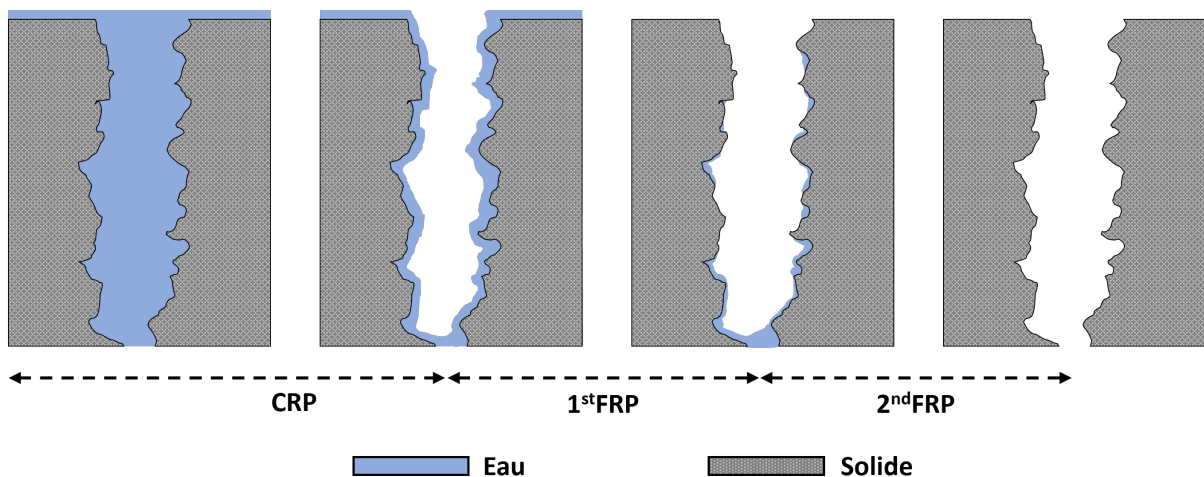


Figure 1.4: Représentation schématique des différentes étapes de séchage d'un corps poreux (adapté de [27])

de chaleur est la convection, alors la température du matériau diminue jusqu'à une température appelée température humide. La fin de la CRP est atteinte quand la couche d'eau liquide à la surface disparaît et que le front de séchage se déplace dans les pores, laissant des pores remplis d'air proche de la surface. La fin de la CRP marque aussi le moment où le retrait de séchage est majoritairement fini. Dans certains cas, la CRP peut cependant continuer même après la fin du retrait si la taille des zones sèches en surface est très petite devant l'épaisseur de la couche limite [30].

La première étape de séchage à vitesse décroissante ou 1stFRP

La 1stFRP est caractérisée par sa vitesse de séchage décroissante et linéaire avec la teneur en eau. Le retrait de séchage est fini et la surface ne se comporte plus comme une surface d'eau libre. Pendant de cette étape la température de la surface commence à augmenter mais reste inférieure à la température ambiante. La plupart de l'évaporation a toujours lieu à la surface mais une partie du séchage a lieu dans les pores où plusieurs mécanismes sont responsables du transfert de l'eau. La température de la surface reste inférieure à la température ambiante [29].

La seconde étape de séchage à vitesse décroissante ou 2ndFRP

La 2ndFRP débute lorsque l'évaporation se fait uniquement à l'intérieur des pores et que l'eau est évacuée par diffusion sous forme de vapeur. La température de surface approche la température ambiante.

1.1.6 Le retrait de séchage

Pour apporter la plasticité nécessaire à la mise en forme, la quantité d'eau initiale dans la pâte est telle que les grains sont éloignés par un film d'eau. Pendant la première étape, cette eau migre et les grains se rapprochent. C'est pendant la CRP que la majeure partie du retrait de séchage du produit a lieu. Pour chaque volume d'eau évaporé, le volume du produit décroît d'une valeur égale. Ce phénomène a beaucoup été étudié, notamment par Scherer qui s'est intéressé aux interactions entre le flux du liquide et les variations dimensionnelles d'un solide poreux [27]. Scherer définit trois forces gouvernant le retrait de séchage : la pression capillaire, la pression osmotique et la pression de séparation.

- **Pression capillaire** : lors de l'évaporation d'eau en surface, le liquide à l'intérieur du solide vient recouvrir les surfaces solides exposées à l'air, ce qui entraîne la formation de ménisques. Il en résulte une pression capillaire dans le liquide donnée par l'expression :

$$P = \frac{2\gamma}{R} \quad (1.14)$$

où γ est l'énergie de l'interface liquide/vapeur (ou tension de surface) et R le rayon de courbure du ménisque.

- **Pression osmotique** : la pression osmotique (Π) est produite par l'existence d'un gradient de concentration en soluté dans la phase liquide. L'évaporation du solvant augmente la concentration en sels proche de la surface exposée au séchage, ce qui cause une diffusion du liquide depuis l'intérieur du produit pour réduire le gradient de concentration. Si les pores sont suffisamment petits pour inhiber le flux de solvant, la diffusion depuis l'intérieur du produit crée une tension dans le liquide de cette région. La force de compression en résultant dans la phase solide peut causer du retrait.
- **Pression de séparation** : les forces de séparation sont des forces à courte portée qui résultent de la présence d'interfaces solide/liquide. Ces forces deviennent plus importantes lorsque la séparation entre les surfaces solides est faible, et seront donc plus importantes vers la fin du séchage, lorsque les grains se sont rapprochés. Ces forces ont tendance à créer un flux de liquide de l'intérieur du produit vers l'extérieur, créant une tension dans le liquide.

Ces forces sont responsables du retrait à l'échelle microscopique. Une manière simple de quantifier le retrait est de le mesurer de manière macroscopique en comparant la

longueur initiale et la longueur finale du produit. En 1921, Bigot propose une méthode de représentation du retrait en fonction de la teneur en eau. Elle permet une interprétation en lien avec le comportement du matériau lors du séchage. Plus tard, Munier propose une représentation simplifiée avec une seule courbe en calculant la teneur en eau et le retrait par rapport à l'état sec. L'approche consiste à effectuer simultanément un suivi de la longueur et de la masse d'un produit durant un séchage dont la cinétique est très lente afin d'assurer un retrait homogène. De cette manière il est possible de s'affranchir de la dépendance au temps en traçant une courbe du retrait en fonction de la teneur en eau en base sèche. Cette courbe deviendra la très connue courbe de Bigot, dont un exemple est présenté sur la Fig. 1.5. Une méthode similaire consistant à présenter le retrait au séchage et la teneur en eau sur le même graphique a aussi été proposée en 1954 par Kingery [31]. Ces courbes sont très utiles pour comprendre le comportement au séchage des différents matériaux céramiques.

Pour tracer ces courbes le retrait linéaire est calculé à partir de la formule suivante :

$$R_{lin} = \frac{L(t) - L_f}{L_f} \quad (1.15)$$

où $L(t)$ est la longueur du produit à un instant t , et L_f est la longueur finale du produit[32]. Trois zones peuvent être distinguées sur la courbe (Fig. 1.5) :

- A → B : dans cette zone le retrait a un comportement linéaire avec la perte de teneur en eau du produit. Les variations dimensionnelles correspondent au volume de l'eau qui a été évaporée. Cette partie linéaire est large pour les matériaux argileux, qui présentent un retrait important, et plutôt réduite pour les matériaux non-argileux.
- B → C : à l'intérieur du matériau les grains commencent à entrer en contact ce qui inhibe le retrait [33]. La teneur en eau X_{BC} est la teneur en eau critique qui sépare la partie du séchage où le retrait est important de celle où le retrait est négligeable. C'est une valeur intéressante, car si avant celle-ci il est nécessaire de sécher prudemment le produit pour éviter les défauts, une fois atteinte le séchage du produit présente moins de risques de provoquer des défauts.
- C → D : les grains qui composent le matériau sont tous en contact et l'eau restante à l'intérieur des pores est progressivement remplacée par de l'air.

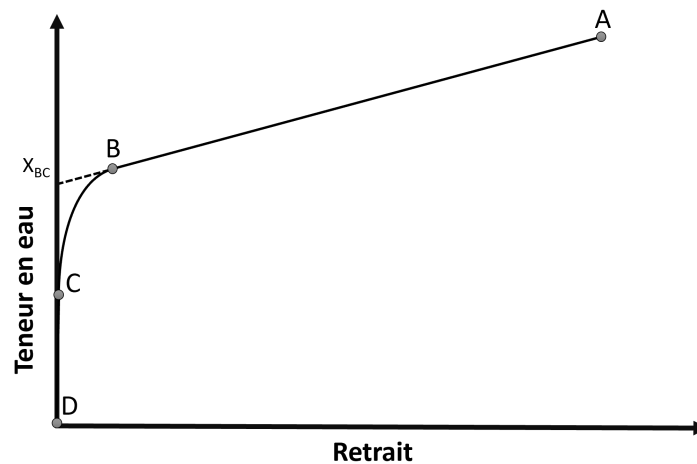


Figure 1.5: Courbe de Bigot théorique

1.2 Propriétés thermophysiques impliquées dans le séchage convectif d'une pâte céramique

Plusieurs propriétés thermo-physiques se démarquent de par leur influence sur le séchage. Ces propriétés varient avec la teneur en eau du matériau, et donc leur valeur va changer en fonction de l'avancement du séchage du produit. Il est important de comprendre comment ces propriétés influencent le séchage, et comment elles varient avec la teneur en eau du matériau.

1.2.1 Activité de l'eau

L'activité de l'eau (a_w) est une propriété mesurable qui dépend de la température et de la teneur en eau du matériau. Elle représente le rapport entre la pression partielle de vapeur d'eau à la surface du matériau (P_v) et la pression de vapeur saturante au dessus d'une surface d'eau libre (P_s) à la même température [24] :

$$a_w = \frac{P_v}{P_s} \quad (1.16)$$

Il y a deux comportements à distinguer pour l'activité de l'eau. Si la surface humide du matériau se comporte comme une surface d'eau libre, ce que l'on suppose être la situation initiale lors du séchage avec la présence d'un fin film d'eau à la surface, alors $P_v = P_s$, et donc $a_w = 1$. Si l'eau dans le matériau est de l'eau liée, alors $P_v < P_s$ et donc $a_w < 1$ et le flux d'eau qui s'évapore à la surface est diminué selon l'Eq. 1.10. Il

est possible d'observer la présence d'eau libre et d'eau liée dans des zones différentes d'un matériau pendant le séchage.

1.2.2 Coefficient de diffusion équivalent

Le coefficient de diffusion équivalent (D_w) est un paramètre décrivant la migration de l'eau à travers le matériau. Il prend en compte à la fois le transport de l'eau liquide mais aussi celui de l'eau sous forme de vapeur, comme décrit dans la partie 1.1.3. Durant la CRP, le système est constitué de grains solides et d'eau liquide qui est transportée grâce aux forces capillaires. À cette étape il n'y a pas de diffusion de vapeur d'eau dans le matériau. Cependant quand les variations dimensionnelles cessent et que l'eau s'évapore depuis les pores à l'intérieur du matériau, le mécanisme de diffusion intervient faisant diminuer D_w . Dans la dernière étape de séchage, le phénomène de diffusion de vapeur devient progressivement prédominant et le coefficient de diffusion équivalent s'en trouve diminué.

Plusieurs études ont permis d'obtenir des valeurs pour le coefficient de diffusion équivalent pendant le séchage. Certaines méthodes sont basées sur la simulation numérique en faisant varier la valeur de D_w pour reproduire au mieux la distribution de l'eau déterminée expérimentalement [34], [35]. D'autres études utilisent uniquement des résultats expérimentaux de suivi de masse d'un échantillon pour approximer une valeur pour le coefficient de diffusion équivalent [36]. Une expression de D_w pour une pâte d'alumine a été proposée par S. Oummadi [25]. Ces études montrent que le coefficient de diffusion équivalent varie de 10^{-6} à 10^{-9} $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ en fonction de la teneur en eau X du matériau.

1.2.3 Chaleur spécifique

La chaleur spécifique est une autre propriété qui influence le transfert de la chaleur pendant le séchage et qui dépend de la teneur en eau dans le matériau. La chaleur spécifique est définie comme la quantité d'énergie nécessaire pour augmenter la température d'un système d'un Kelvin. La chaleur spécifique peut être calculée comme une simple fonction de la teneur en eau en utilisant la loi des mélanges [25] :

$$C_p = \frac{XC_{p_{eau}} + C_{p_{solide}}}{X + 1} \quad (1.17)$$

où X est la teneur en eau (en base sèche), $C_{p_{eau}}$ est la chaleur spécifique de l'eau en $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, et $C_{p_{solide}}$ est la chaleur spécifique de la phase solide.

La chaleur spécifique de l'eau est égale à $4210 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à 20°C , ce qui est 4 fois plus élevé que la plupart des oxydes céramiques. L'incorporation d'eau dans une céramique a donc un effet important sur la chaleur spécifique.

1.2.4 Conductivité thermique

L'influence de l'eau sur la conductivité thermique est un phénomène important, en géologie notamment où la mesure de la conductivité thermique des roches permet de prédire leur durabilité [37], mais aussi dans la conception de systèmes d'élimination de déchets nucléaires à haute activité [38]. Ces études montrent toutes que la conductivité thermique augmente avec la teneur en eau du matériau. Dans le cas de la bentonite, la conductivité thermique augmente de $0,7$ à $1,2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ lorsque la teneur en eau augmente de 5% à 30% [38].

Ces variations de conductivité thermique peuvent être expliquées en prenant en compte le remplacement de l'air contenu dans les pores du matériau par de l'eau. En effet, la conductivité thermique de l'eau ($0,61 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) est largement supérieure à celle de l'air ($0,026 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$), la conductivité thermique effective du matériau est donc fortement impactée par ce changement. Plusieurs études ont proposé et testé des modèles décrivant la relation entre la conductivité thermique et la teneur en eau [37], [39], [40]. Une étude portant sur l'évolution de la conductivité thermique d'une pâte d'alumine à des teneurs en eau décroissantes a montré que λ pouvait varier d'un facteur de 10 ($3,1$ à $0,25 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) lors du séchage [41]. Des études récentes ont cependant montré que dans le cas de matériaux granulaires les variations de conductivité thermique ne peuvent pas être attribuées en totalité à la contribution de l'eau [42]. En effet, dans leur papier Smits et al ont observé une augmentation de la conductivité thermique de sable de silice compacté de $0,4 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à l'état sec jusqu'à $1,8 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ avec l'ajout de 2% volumique d'eau. Cette augmentation est expliquée par la diminution de la résistance de contact à l'interface entre les grains solides due à la présence d'eau dans le matériau.

1.3 La micro-extrusion de pâtes céramiques ou robocasting

Les procédés de fabrication additive sont des technologies dont le potentiel n'est plus à démontrer, et qui pourraient remplacer certaines méthodes de production actuelles dans les prochaines décennies. Ces nouvelles technologies sont déjà utilisées à bon escient pour la réalisation de prototypes et de modèles en plastique et métal, cependant la production de produits céramiques et les procédés qui y sont associés présentent encore quelques défis. Il existe de nombreuses technologies de fabrication additive pour les céramiques, et dans le cas de cette thèse nous nous sommes intéressés au robocasting, une technologie développée et brevetée par Cesarano au Sandia National Laboratories et qui s'est aujourd'hui développée pour devenir l'une des technologies de fabrication additive céramique les plus répandues.

1.3.1 Présentation du robocasting

Le robocasting, aussi appelé Direct Ink Writing ou micro-extrusion, est une technologie de fabrication additive basée sur l'extrusion directe d'une pâte. Elle a été développée avec pour objectif la fabrication libre (i.e. ne nécessitant aucun support) de pièces. L'utilisation de pâtes permet la production de pièces qui conservent leur forme initiale malgré les contraintes exercées par les couches supérieures. Afin d'atteindre les bonnes propriétés rhéologiques, les pâtes contiennent des additifs bien choisis [43].

Le principe de fonctionnement de la technologie de robocasting consiste à acheminer une pâte jusqu'à la buse d'extrusion où elle est extrudée et un programme informatique déplace la tête d'extrusion pour former la pièce par couches successives. Ce principe est schématisé par la Fig. 1.6.

Cette méthode permet la fabrication d'un grand nombre de structures comme des pièces complexes avec des pores interconnectés, des matériaux composites, des solides monolithiques ou encore des matériaux à porosité contrôlée. Le robocasting est une technologie d'impression directe, en contraste avec les technologies indirectes se basant sur des lits de poudres ou des résines photo-polimérisantes. Le robocasting présente aussi des avantages majeurs :

- **Taille de la zone d'impression** : la zone d'impression des machines de robocasting peut permettre l'impression de pièces allant jusqu'au mètre.

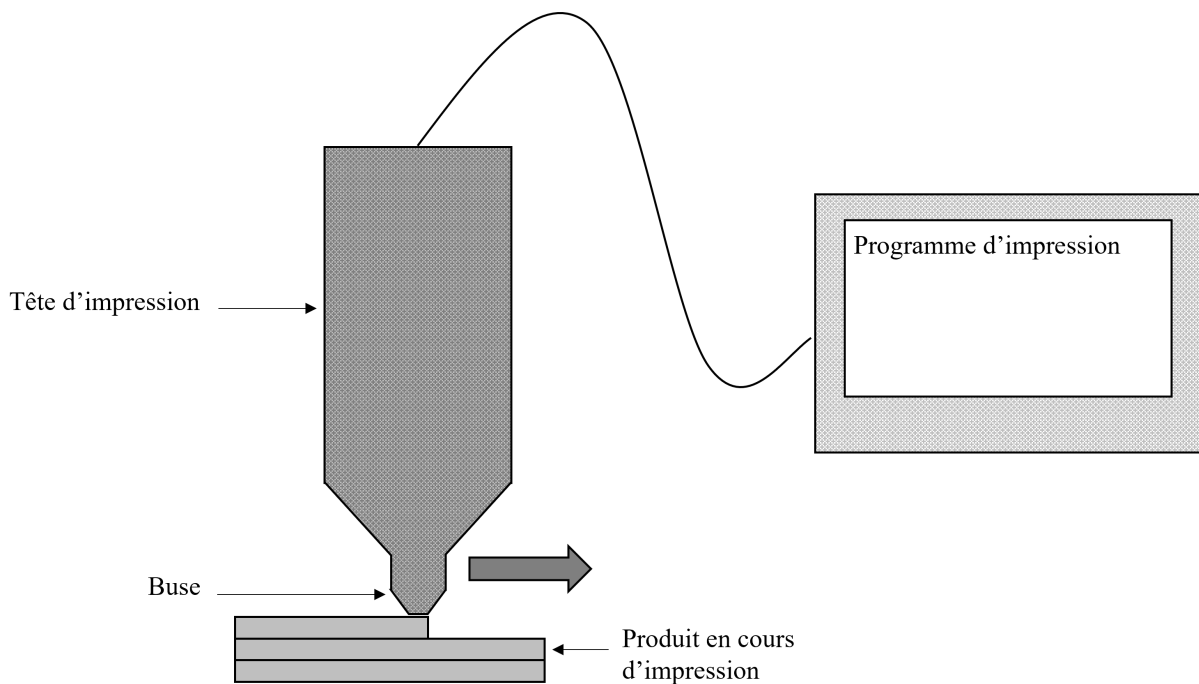


Figure 1.6: Principe schématique du robocasting.

- **Multimatériaux** : l'utilisation de plusieurs buses lors de l'impression peut permettre la fabrication de matériaux composites innovants [44].
- **Contrôle de la porosité** : l'empilement de cordons permet la fabrication de pièces où la taille des pores peut être un paramètre de fabrication. Cet aspect de la technologie fait l'objet de beaucoup de recherches dans le domaine des biotechnologies où le contrôle de la porosité permet l'impression d'implants osseux avec une excellente bio-compatibilité (taille de pores comprise entre 300 et 600 μm) [45].

Le robocasting est une technologie versatile dont le faible coût et l'accessibilité en font une technologie de choix pour un grand nombre d'utilisateurs. C'est aussi une technologie modulaire où tous les aspects sont modifiables, depuis la pâte utilisée jusqu'à la structure de la machine.

1.3.2 Fonctionnement de la technologie de robocasting

La technologie de robocasting repose sur l'extrusion d'une pâte céramique à travers une buse pour former des cordons qui sont empilés afin de créer une pièce. Il existe

un grand nombre de méthodes d'extrusion, deux d'entre elles se démarquent par leur popularité dans les machines de robocasting.

Méthodes d'extrusion

- **Entraînement par une vis sans fin** : cette méthode est sans doute la plus répandue pour le robocasting, en particulier sur les machines commerciales. Elle consiste en l'utilisation d'une vis d'extrusion sans fin pour acheminer la pâte vers la buse. La Fig. 1.7 présente le schéma de fonctionnement de cette méthode. Un moteur situé sur la tête d'extrusion entraîne la vis, qui, de par son mouvement de rotation, déplace la pâte vers la buse.

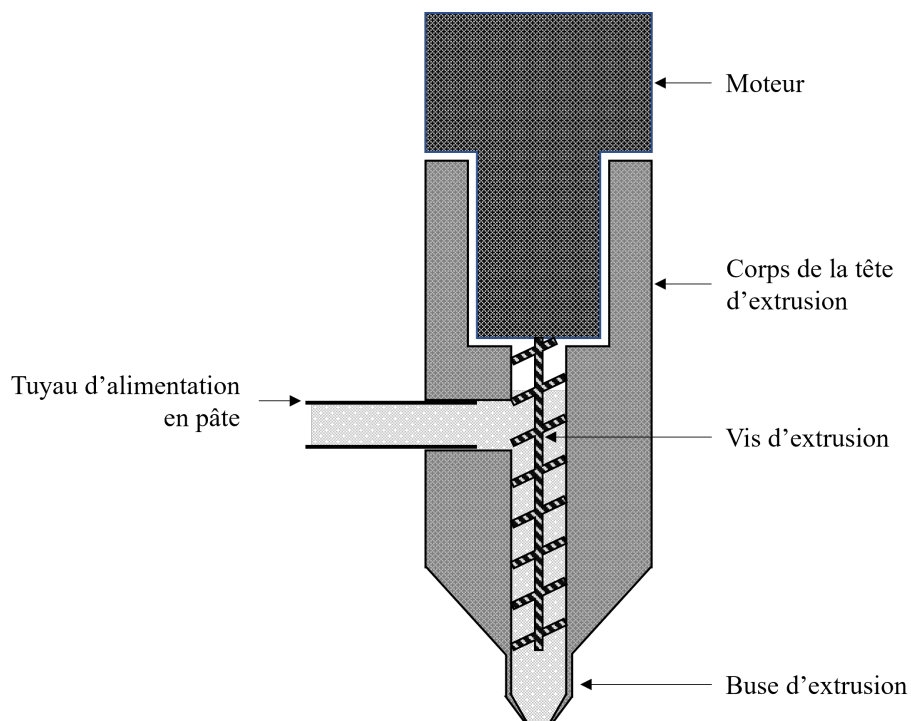


Figure 1.7: Représentation schématique d'une tête d'extrusion avec entraînement par vis.

L'alimentation de la tête d'extrusion se fait à l'aide d'un réservoir séparé, présenté sur la Fig. 1.8. Ce dernier est divisé en deux compartiments séparés par un piston. Un compartiment est rempli avec la pâte utilisée pour l'impression et l'autre est vide. Une augmentation de la pression dans le compartiment vide pousse le piston et déplace la pâte depuis le réservoir jusqu'à la tête d'extrusion à travers un tuyau. L'utilisation d'un réservoir séparé de la tête d'extrusion permet de choisir sa taille en fonction des besoins de l'utilisateur.

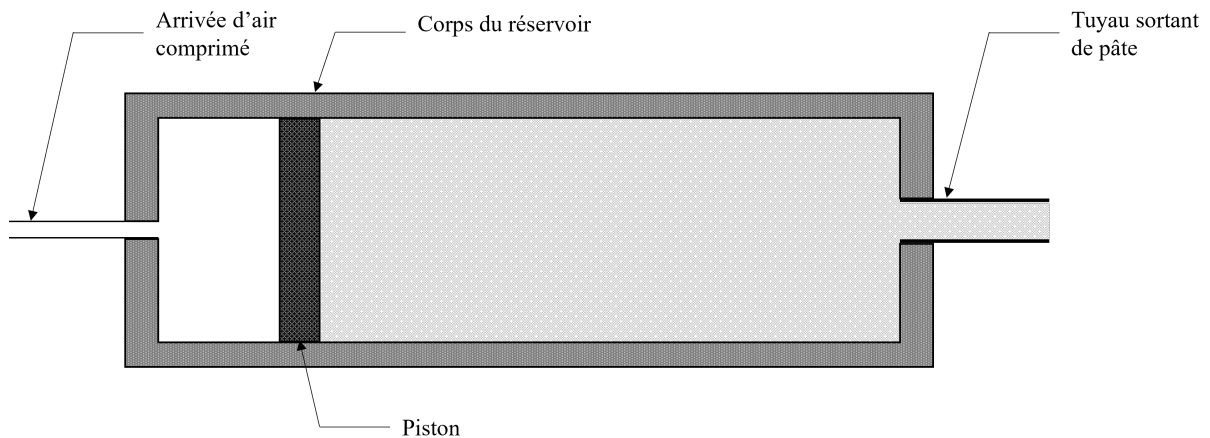


Figure 1.8: Représentation schématique d'un réservoir de pâte sous pression.

- **Entraînement par un piston :** cette méthode est plus courante sur les machines orientées pour la recherche. La pâte est stockée directement au-dessus de la buse d'extrusion et elle est poussée vers la buse à l'aide d'un piston et d'une vis.

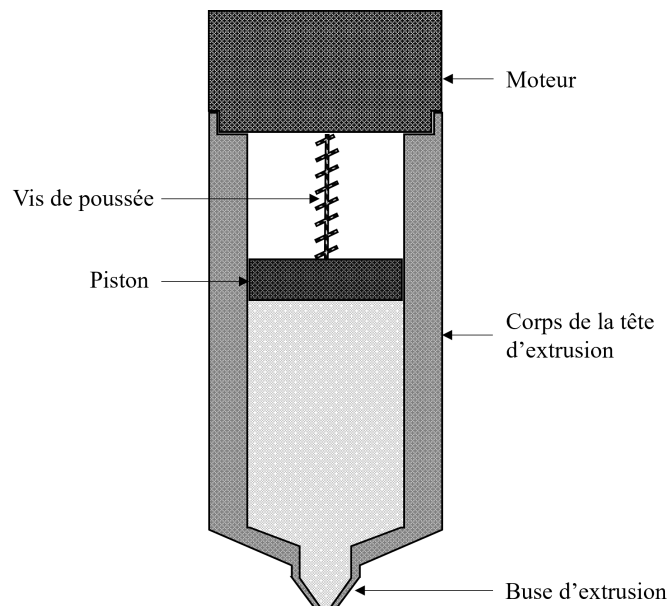


Figure 1.9: Représentation schématique d'une tête d'extrusion avec entraînement par piston.

Contrairement à la méthode précédente où la tête d'extrusion et le réservoir de pâte sont séparés, ici les deux sont rassemblés. Cela induit naturellement une masse plus élevée de la tête d'extrusion, rendant les déplacements précis plus difficiles et imposant des contraintes mécaniques importantes sur les axes de déplacement. C'est pour cette raison que le réservoir de pâte des machines

utilisant cette méthode est de petite taille. Néanmoins la proximité du réservoir et de la buse d'extrusion permet d'imprimer avec de très petites quantités de pâte, ce qui est un avantage pour les travaux de recherche de formulation.

Chacune des deux méthodes d'extrusion présente ses avantages, et l'utilisation de l'une ou de l'autre dépend principalement des besoins de l'utilisateur. À cette méthode d'extrusion est couplée une technologie de déplacement de la tête d'extrusion qui définit la structure de la machine d'impression.

Structures des machines d'impression

Dans le domaine du robocasting, on rencontre couramment deux types de structures de machine.

- **Structure cartésienne** : cette structure, qui tire son nom du système de coordonnées cartésien, est très courante en impression FDM de polymères. Elle permet le déplacement de la tête d'extrusion dans une zone rectangulaire grâce à des axes de déplacement linéaires selon les direction x, y et z. La vitesse d'impression est limitée mais cette structure permet des déplacements avec une grande précision. Cette structure est schématisée sur la Fig. 1.10.

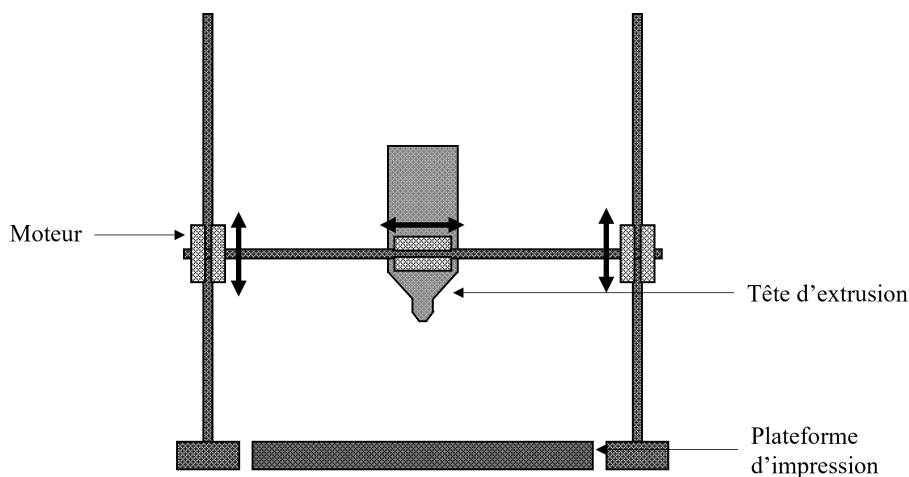


Figure 1.10: Structure schématisée en 2D d'une imprimante de type cartésienne.

- **Structure delta** : cette structure est la plus populaire en ce qui concerne les machines d'impression commerciales. Le mode de déplacement de la tête d'extrusion particulier lui impose une zone d'impression circulaire, mais dont la hauteur est plus importante que celle d'une imprimante à structure cartésienne. La structure delta est composée de trois axes verticaux disposés en triangle et des tiges en

métal relie ces axes à la tête d'extrusion. Des mouvements verticaux le long des axes provoquent le mouvement sur x, y et z de la tête d'extrusion. Il est possible d'atteindre une grande vitesse d'impression, cependant la précision des déplacements est plus faible qu'avec une structure cartésienne. Cette structure est schématisée sur la Fig. 1.11.

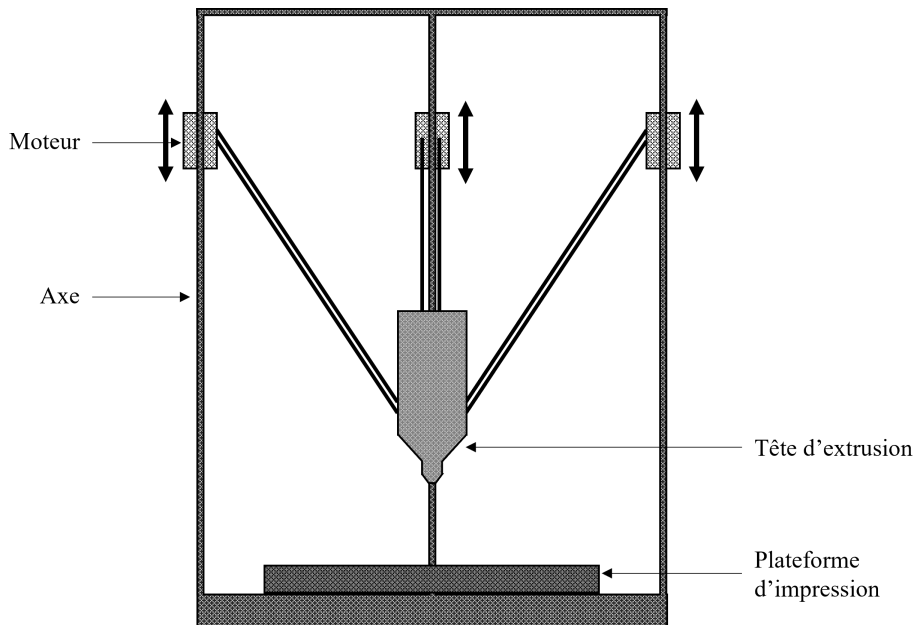


Figure 1.11: Structure schématique en 2D d'une imprimante de type delta.

De même que pour les méthodes d'extrusion, chacune des structures présente ses avantages. Généralement les structures cartésiennes sont plutôt associées avec une extrusion par piston en raison de la masse importante de la tête d'extrusion. Dans ce cas il est courant de voir le plateau d'impression assurer le mouvement sur les axes x et y tandis que la tête d'extrusion se déplace sur z. Les structures delta sont souvent associées avec une extrusion par une vis sans fin, dont la légèreté et la flexibilité de la taille de réservoir va permettre l'impression rapide de grandes pièces.

1.3.3 Extrusion d'une pâte céramique

L'extrusion consiste à mettre en forme une matière plastique cohésive en la forçant à travers l'orifice d'une filière rigide. Cette méthode de façonnage de pâte céramique est utilisée dans l'industrie céramique pour la fabrication de produits allant du gramme jusqu'à la tonne.

Durant l'extrusion, la force produite par la vis d'extrusion ou le piston doit être supérieure à la force de friction entre la pâte céramique et les parois de la filière. Si cette condition est respectée, il y a alors un écoulement de la pâte vers la sortie de la filière. Il existe alors différents mécanismes d'écoulement durant l'extrusion :

- **Écoulement en bloc** : aussi appelé "plug flow", il s'agit d'un écoulement où la matière ne présente pas de gradient de vitesse. Un glissement est observé au niveau des parois de la filière, et la matière s'écoule comme d'un seul bloc.
- **Écoulement laminaire** : il s'agit d'un écoulement présentant un gradient de vitesse. La vitesse d'écoulement de la matière est plus faible à l'interface avec la paroi de la filière, du fait des interactions entre la matière et la paroi, provoquant l'apparition du gradient.

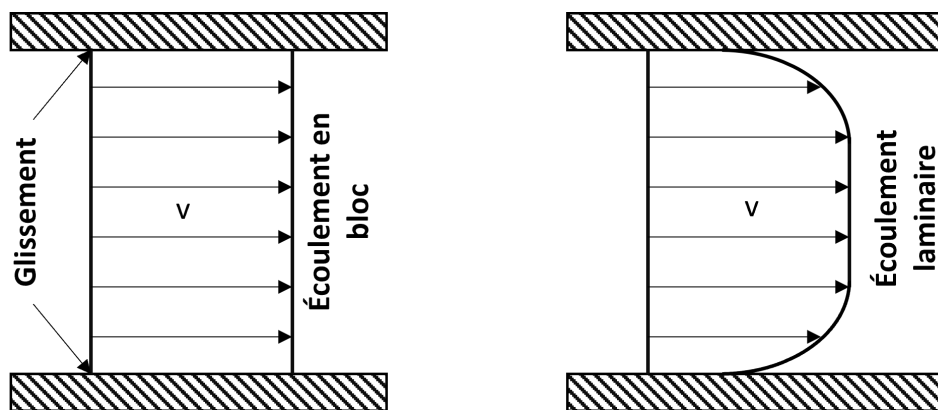


Figure 1.12: Profils de vitesse pour un écoulement en bloc (à gauche) et un écoulement laminaire (à droite), adapté de [46]

Ces différents types d'écoulements sont illustrés sur la Fig. 1.12. L'écoulement spécifique adopté par une pâte dépend de la géométrie de la filière et des propriétés rhéologiques de la pâte [46]. De cet écoulement vont dépendre plusieurs caractéristiques du produit comme les défauts internes, la rugosité de surface ou encore l'orientation des particules présentes dans la pâte [47], [48].

1.3.4 Orientation des particules lors de l'extrusion

Lors de son extrusion la pâte interagit avec les parois de la filière créant un phénomène de cisaillement de la pâte. La description de ces contraintes se fait à l'aide d'une

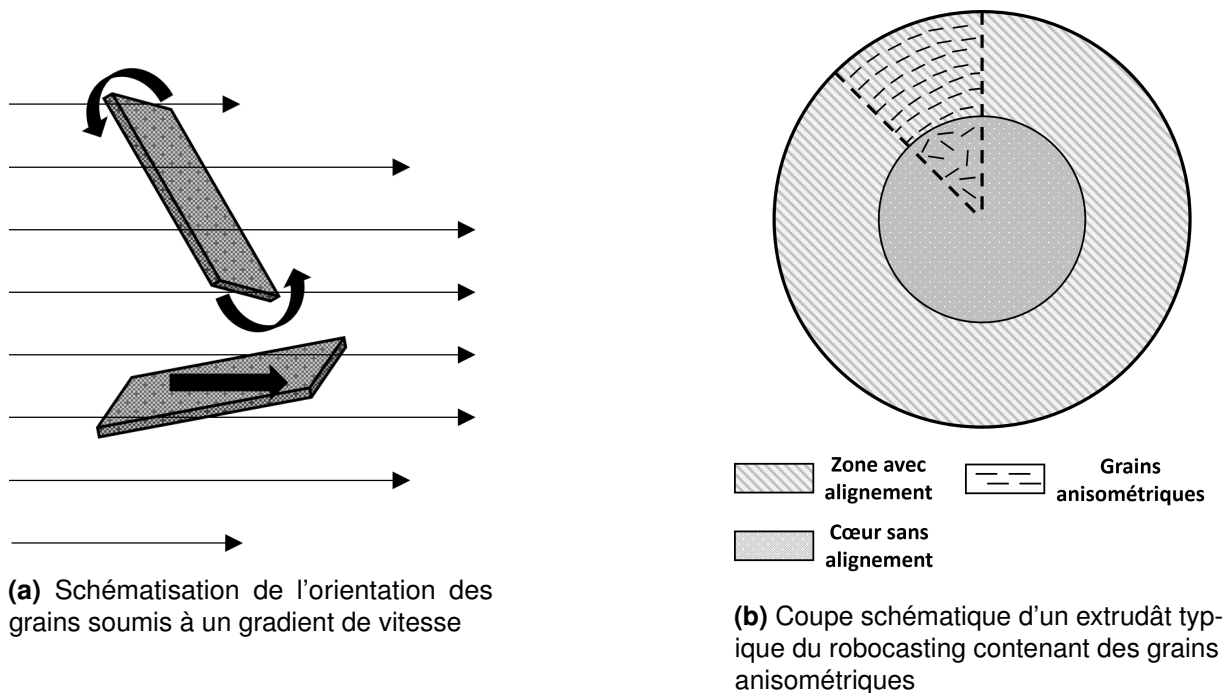


Figure 1.13: Représentation schématique de l'orientation des grains anisométriques dans un cordon

grandeur appelée le taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$), qui est fonction de la contrainte de cisaillement et de la nature du fluide. Les contraintes sont générées à l'interface entre la pâte et la paroi mais provoquent l'apparition d'un gradient de vitesse dans l'extrudât (Fig. 1.12).

Lorsque la pâte est composée de grains anisométriques, comme des plaquettes d'argile par exemple, le gradient de vitesse peut être à l'origine d'une orientation des grains dans le sens de l'extrusion. Considérons une filière cylindrique, les grains pour lesquels la normale à la surface la plus grande du grain est parallèle à la paroi vont subir une torsion et tourner, alors que les grains orientés tangentiellement à la paroi ne chevauchent pas le gradient de vitesse et donc ne sont pas affectés par celui-ci, comme illustré sur la Fig. 1.13(a). Il en résulte que les grains sont majoritairement orientés tangentiellement à la paroi lors de l'extrusion [49], [50]. Généralement le coeur de l'extrudât ne devrait montrer aucun alignement préférentiel puisqu'il existe une zone où le gradient de vitesse est nul. Ce phénomène est représenté schématiquement sur la Fig. 1.13(b). La taille de ce coeur dépend principalement de la longueur de la filière puisque le degré d'alignement des grains augmente avec le temps pendant lequel la pâte subit le gradient de vitesse [49].

Dans le cas du robocasting, où la filière est cylindrique et très petite (de quelques mm à quelques centaines de μm), ce phénomène est exacerbé. L'alignement des grains dans

les cordons est dans certains cas une propriété recherchée, par exemple pour améliorer la résistance mécanique des produits imprimés [49], [51]. Récemment, plusieurs études ont été réalisées pour mieux comprendre et modéliser l'orientation des grains lors de l'extrusion [48]. En revanche, l'influence de l'alignement des grains sur le retrait au séchage de produits céramiques a été peu étudié.

1.4 Conclusion

Le séchage est l'action qui consiste à retirer l'eau d'un matériau poreux par évaporation. Un apport de chaleur est nécessaire pour assurer son évaporation, qui peut se faire soit par conduction, soit par convection ou soit par rayonnement. Cette étude porte sur le séchage par convection, celui-ci étant le mode d'apport de chaleur le plus largement adopté pour le séchage de produits céramiques.

Le procédé de séchage d'une céramique crue présente trois étapes qui dépendent de la composition du matériau et des conditions de séchage. Le séchage débute par une étape à vitesse constante (CRP) pendant laquelle l'évaporation de l'eau se fait uniquement à la surface du matériau. Les forces capillaires assurent une migration de l'eau vers la surface. Dans la plupart des cas, cette perte en volume d'eau par évaporation entraîne un retrait volumique du produit. Ce phénomène a été très étudié car il provoque l'apparition de défauts comme des déformations ou des fissures lorsque le retrait n'est pas isotrope et uniforme. Lorsque le front de séchage se déplace dans les pores, la vitesse de séchage diminue et la température de surface augmente : c'est la deuxième étape de séchage ou 1stFRP. Elle est suivie de la troisième étape de séchage, la 2ndFRP. Ces deux dernières étapes voient l'apparition d'un nouveau mécanisme de transport de l'eau : la diffusion de l'eau sous forme de vapeur. Elle remplace progressivement la migration de l'eau liquide à travers les pores comme mécanisme dominant au fur et à mesure que le séchage s'achève.

Plusieurs propriétés thermo-physiques ont un impact majeur sur le procédé de séchage : l'activité de l'eau, le coefficient de diffusion équivalent, la chaleur spécifique et la conductivité thermique. Ces propriétés varient en fonction de la teneur en eau dans le matériau. Dans cette étude une attention particulière sera portée à la mesure précise de ces propriétés pour notre pâte.

Les problématiques de séchage ont beaucoup été étudiées dans le cas de procédés céramiques classiques, mais très peu d'études s'intéressent au comportement au séchage de produits fabriqués par robocasting. Cette technique de fabrication additive consiste à imprimer un produit couche par couche en extrudant et en déposant un cordon de pâte céramique pour former une pièce. Il existe différents types de machines mais le besoin de maîtriser les variations dimensionnelles liées au séchage est un problème majeur quelle que soit la machine. En effet, cette méthode de mise en forme étant basée sur l'extrusion, de fortes contraintes sont subies par la pâte ce qui peut potentiellement impacter le retrait.

Ce premier chapitre a présenté brièvement l'état de l'art concernant le séchage convectif des produits céramiques et l'impression de pâte céramique par robocasting. Ces connaissances vont aider à la construction d'un modèle par éléments finis du séchage convectif d'un produit céramique dans le prochain chapitre.

2

Modélisation du séchage convectif d'un produit céramique

Sommaire

2.1	Construction d'un modèle de séchage convectif pour un produit céramique cru	46
2.1.1	Hypothèses simplificatrices	46
2.1.2	Définition des équations constitutives	47
2.1.3	Définition des conditions aux limites	47
2.1.4	Formulation variationnelle pour le séchage convectif	48
2.2	La méthode lagrangienne actualisée pour la modélisation des variations dimensionnelles	51
2.2.1	Description de la méthode lagrangienne actualisée	51
2.2.2	Prise en compte des variations dimensionnelles liées au retrait de séchage	55
2.3	Résolution numérique du modèle	59
2.3.1	Fonctionnement général de la méthode de résolution	59
2.3.2	Description des étapes de l'algorithme	60
2.4	Validation du modèle	62

Chapitre 2 – Modélisation du séchage convectif d'un produit céramique

2.4.1	Obtention de la température humide	62
2.4.2	Suivi du séchage en fonction du temps	63
2.5	Conclusion	65

CE chapitre présente au lecteur les différentes étapes nécessaires à la création d'un modèle de séchage convectif par éléments finis. Une attention particulière est portée à la prise en compte des variations dimensionnelles avec l'utilisation d'une méthode de modification de la géométrie pour prendre en compte le retrait de séchage.

2.1 Construction d'un modèle de séchage convectif pour un produit céramique cru

Le séchage d'un produit céramique est un phénomène complexe qui fait intervenir plusieurs physiques et de nombreux paramètres, aussi bien liés au matériau qu'à l'air de séchage. Dans le but de mieux comprendre et de maîtriser le procédé de séchage, un grand nombre d'études se sont tournées vers la simulation numérique. Certaines considèrent le séchage comme le couplage d'un problème thermique et d'un problème de diffusion de l'eau [24]. La faiblesse de ces modèles est souvent l'hypothèse que le retrait de séchage a un impact négligeable sur les résultats finaux, et de ce fait les variations dimensionnelles liées au retrait de séchage ne sont pas prises en compte dans le modèle. Cependant, le retrait qui peut parfois être important diminue l'aire des surfaces exposées au séchage et donc diminue aussi la vitesse de séchage.

2.1.1 Hypothèses simplificatrices

Une modélisation exhaustive du séchage prenant en compte tous les mécanismes de transfert de masse et de chaleur est possible, cependant elle requiert des propriétés qui sont parfois difficiles à mesurer et nécessite des temps et une puissance de calcul importants. Pour cette raison, il est très courant de faire des hypothèses simplificatrices

qui vont permettre de réduire la complexité du modèle sans pour autant affecter la précision des résultats de manière significative.

Afin de pouvoir construire un modèle du séchage, quelques hypothèses ont été faites :

- (1) la céramique crue est composée d'un squelette solide poreux homogène et d'eau liquide,
- (2) toutes les propriétés physiques pour les transferts de masse et de chaleur sont isotropes,
- (3) les mouvements de l'eau au sein du système obéissent à une loi de diffusion (loi de Fick) impliquant un coefficient de diffusion équivalent,
- (4) l'évaporation de l'eau a lieu uniquement à la surface externe du produit durant le séchage.

2.1.2 Définition des équations constitutives

La modélisation du séchage convectif nécessite l'utilisation de deux équations constitutives décrivant les transferts de masse et de chaleur au sein du matériau. Les équations constitutives sont les lois de comportement de la matière modélisée. Ces équations s'appliquent sur l'ensemble du solide Ω .

La modélisation des transferts de chaleur dans un milieu isotrope utilise l'équation suivante :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{Q} = 0 \quad \text{avec} \quad \vec{Q} = -\lambda \vec{\nabla} T \quad (2.1)$$

où T est la température, λ est la conductivité thermique, ρ est la masse volumique, et C_p est la chaleur spécifique. Les transferts de masse au sein du produit sont décrits par l'équation de diffusion de masse, donnée par :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J} = 0 \quad \text{avec} \quad \vec{J} = -D_w \vec{\nabla} C \quad (2.2)$$

où C est la concentration en eau en mol.m^{-3} et D_w est le coefficient de diffusion équivalent en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$.

2.1.3 Définition des conditions aux limites

Selon l'hypothèse (4), seule la surface externe du produit est en contact direct avec l'air environnant. L'interaction entre cette surface et l'air implique une fine couche où la teneur en vapeur d'eau et la température varient. Elle est appelée couche limite. La

vitesse d'évaporation à la surface est proportionnelle à la différence entre la teneur en vapeur d'eau de l'air (C_{air}) et la teneur en vapeur d'eau dans la couche limite à la surface du produit (C_s). Le flux de masse (\vec{J}) est donnée par l'Eq. 1.10 rappelée ici :

$$-\vec{J} \cdot \vec{n} = k(C_{air} - C_s) \quad \text{sur } \partial\Omega \quad (2.3)$$

Le transfert de chaleur à la surface exposée au séchage fait intervenir deux termes : le premier rend compte de l'échange par convection via la loi de Newton et le deuxième terme permet de prendre en compte l'enthalpie de vaporisation de l'eau. Le flux de chaleur (\vec{Q}) à la surface est donné par l'Eq. 1.12 rappelée ici :

$$-\vec{Q} \cdot \vec{n} = h(T_{air} - T_s) - \vec{J} \cdot \vec{n}(L_w M_w) \quad \text{sur } \partial\Omega \quad (2.4)$$

Les conditions aux limites modélisent le comportement du solide à son interface avec l'environnement, ainsi ces équations sont appliquées à la surface $\partial\Omega$ exposée au séchage. La condition aux limites pour les surfaces non exposées au séchage n'est pas précisée. Pour la thermique, plusieurs conditions aux limites peuvent être prises en compte : température imposée (qui peut être différente de celle de l'air ambiant), flux de chaleur imposé ou encore convection sans séchage (par exemple en présence d'un film plastique autour de l'échantillon).

2.1.4 Formulation variationnelle pour le séchage convectif

À partir des équations constitutives et des conditions aux limites choisies pour modéliser le séchage convectif, il est possible d'écrire le système d'équations suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (\lambda \vec{\nabla} T) \quad \text{dans } \Omega \\ \frac{\partial C}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (D_w \vec{\nabla} C) \quad \text{dans } \Omega \\ -\vec{Q} \cdot \vec{n} = h(T_{air} - T_s) + k L_w M_w (C_{air} - C_s) \quad \text{sur } \partial\Omega \\ -\vec{J} \cdot \vec{n} = k(C_{air} - C_s) \quad \text{sur } \partial\Omega \\ T = T_0 \quad \text{à } t = 0 \\ C = C_0 \quad \text{à } t = 0 \end{array} \right. \quad (2.5)$$

Pour être en mesure d'obtenir une solution numérique à notre modèle, en utilisant la méthode des éléments finis, il est nécessaire de transformer ce système d'équations en une formulation variationnelle. Cette conversion se fait en plusieurs étapes. La première est la discrétisation des dérivées de temps. Dans le cas de ce modèle, un schéma d'intégration d'Euler implicite est utilisé [52]. Les équations de transferts de masse et de chaleur deviennent alors :

$$\frac{(C_{n+1} - C_n)}{\Delta t} = D_w \nabla^2 C_{n+1} \quad \text{sur } \Omega \setminus \partial\Omega \quad (2.6)$$

$$\rho C_p \frac{(T_{n+1} - T_n)}{\Delta t} = \lambda \nabla^2 T_{n+1} \quad \text{sur } \Omega \setminus \partial\Omega \quad (2.7)$$

où λ et D_w sont supposés isotropes au sein du matériau. Ces deux équations sont multipliées par leur fonction test respective, et intégrées sur le domaine Ω . Il est alors possible d'obtenir :

$$\begin{aligned} \int_{\Omega} \rho C_p (T_{n+1} - T_n) T_{test} dV - \Delta t \int_{\Omega} \lambda T_{test} \nabla^2 T_{n+1} dV \\ + \int_{\Omega} (C_{n+1} - C_n) C_{test} dV \\ - \Delta t \int_{\Omega} D_w C_{test} \nabla^2 C_{n+1} dV = 0 \end{aligned} \quad (2.8)$$

Une intégration par parties est réalisée pour transformer les dérivées de second ordre en simple dérivées de premier ordre. Ainsi l'équation devient :

$$\begin{aligned} \int_{\Omega} \rho C_p (T_{n+1} - T_n) T_{test} dV + \int_{\Omega} (C_{n+1} - C_n) C_{test} dV = - \Delta t \lambda \int_{\Omega} \nabla T_{test} \cdot \nabla T_{n+1} dV \\ - \Delta t D_w \int_{\Omega} \nabla C_{test} \cdot \nabla C_{n+1} dV \\ + \Delta t \int_{\partial\Omega} h (T_{air} - T_{n+1}) T_{test} dS \\ + \Delta t \int_{\partial\Omega} k L_w M_w (C_{air} - C_{n+1}) T_{test} dS \\ + \Delta t \int_{\partial\Omega} k (C_{air} - C_{n+1}) C_{test} dS \end{aligned} \quad (2.9)$$

L'équation 2.9 est la formulation variationnelle qui va permettre de calculer la distribution de l'eau et de la température à l'intérieur de la géométrie, avec des conditions limites de séchage convectif. Des variations de cette approche de modélisation du séchage

convectif sont reprises dans divers travaux [24], [53].

2.2 La méthode lagrangienne actualisée pour la modélisation des variations dimensionnelles

Le retrait représente une partie très importante du comportement au séchage d'une pièce. La diminution de l'aire de la surface exposée au séchage, les hétérogénéités de retrait et les contraintes internes générées par le retrait sont des phénomènes peu modélisés. Pourtant la prise en compte de ces derniers pourrait permettre d'obtenir des résultats plus réalistes. Dans cette optique, la méthode du lagrangien actualisé a été utilisée de manière à suivre, pour chaque instant, les variations dimensionnelles.

2.2.1 Description de la méthode lagrangienne actualisée

La formulation lagrangienne actualisée est une méthode utilisée en mécanique des milieux continus pour modéliser les problèmes de grandes déformations [54]. Contrairement à la formulation eulerienne classique, utilisée pour la description de problèmes en petites déformations comme des essais de résistance des matériaux pour les céramiques, cette formulation permet la description de déformations de plus grande échelle, comme par exemple la description du comportement hyperélastique d'un pneu [55].

La formulation lagrangienne actualisée est une méthode de calcul incrémentale dont la particularité réside dans le fait que la dernière configuration calculée devient la configuration de référence pour l'incrément de temps suivant. Dans les faits, cela veut dire que la géométrie modélisée évolue à chaque pas de temps en fonction des déformations calculées par le modèle. Cette méthode de résolution est intéressante car elle permet de prendre en compte des déformations fortement non-linéaires en les divisant en une somme de petits déplacements. La Fig. 2.1 présente schématiquement le principe d'évolution incrémentale de la géométrie pour converger vers une géométrie finale ayant subi une grande déformation par rapport à la configuration initiale. Un grand avantage d'avoir une géométrie évolutive est que les conditions aux limites suivent les surfaces qui leurs sont associées.

Bien que très utilisée pour la modélisation du comportements mécanique de métaux ou de polymères, la formulation lagrangienne actualisée n'est à notre connaissance pas exploitée pour la modélisation de pâtes céramiques.

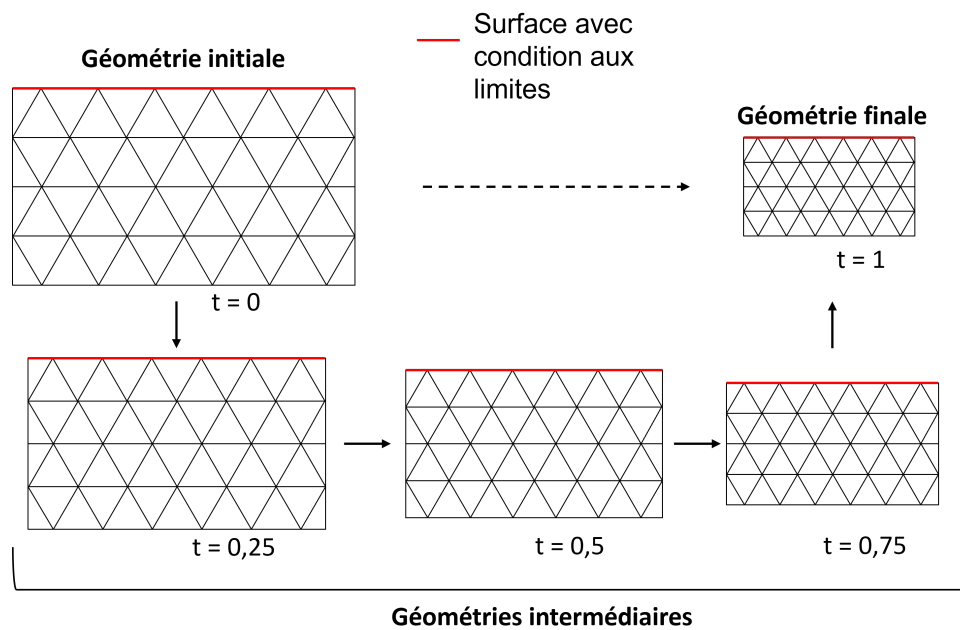


Figure 2.1: Schématisation du principe de résolution par évolution incrémentale de la géométrie.

Dans la suite de cette partie, la formulation lagrangienne actualisée va être présentée sous forme d'équations. Dans le but d'obtenir des formulations claires, les conventions de notation suivantes ont été utilisées [56]:

- les notations indicielles X_i et X_{ij} sont utilisées pour désigner respectivement les vecteurs et les matrices,
- l'indice à gauche du symbole indique le temps de référence. Par exemple, ${}_tX$ indique que la variable X est évaluée en faisant référence au temps t ,
- l'exposant à gauche du symbole indique le temps de considération de la grandeur. tX indique par exemple la valeur de la variable X au temps t , ce qui correspondrait à $X(t)$ avec une notation classique,
- une virgule dans l'indice de droite indique une dérivation par rapport à la variable géométrique. $X_{i,j}$ indique par exemple la dérivée partielle de X_i par rapport à la coordonnée x_j . En notation classique cela serait écrit : $X_{i,j} = \frac{\partial X_i}{\partial x_j}$.

La Fig. 2.2 présente les différentes configurations auxquelles les expressions développées dans ce chapitre feront référence. Cette figure présente également plusieurs grandeurs qui seront reprises dans les équations qui vont suivre. La position d'un point dans la configuration actuelle (au temps t) est notée tx_i et, dans cette même configuration, la géométrie est notée tV . Le déplacement du point i est quant à lui noté u_i . Il y est également présenté l'incrément de temps Δt qui sépare la configuration

actuelle de la nouvelle configuration calculée. L'incrément de déplacement du point i entre la configuration actuelle et la nouvelle configuration est lui noté $\Delta_t u_i$.

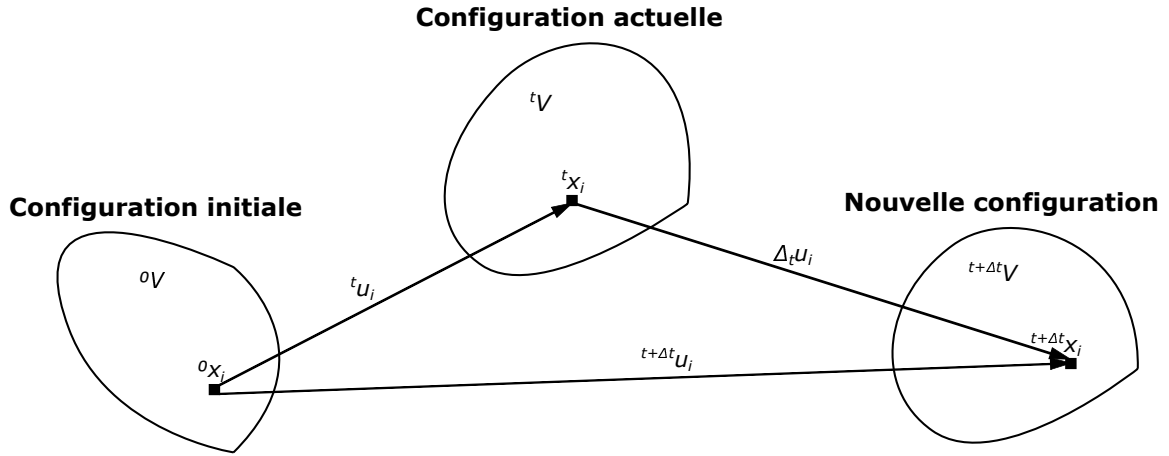


Figure 2.2: Configurations de référence.

Au temps t , la position relative de deux points s'écrit $d^t x_i$. Le gradient de la transformation s'écrit donc :

$${}^0 F_{ij} = {}^t x_{i,j} = \frac{\partial^t x_i}{\partial^0 x_j} \quad (2.10)$$

De la même manière que pour les équations de thermique et de transfert de masse présentées dans la partie précédente, il est nécessaire d'obtenir une formulation variationnelle du problème afin de pouvoir dériver une solution numérique. Pour cela il faut partir du principe du travail virtuel :

$$\int_{tV} {}^{t+\Delta t} S_{ij} \delta {}^{t+\Delta t} \epsilon_{ij} d^t V = \mathcal{R}_{ext} \quad (2.11)$$

où ${}^{t+\Delta t} S_{ij}$ est le second tenseur de Piola-Kirchoff en référence au temps t et ${}^{t+\Delta t} \epsilon_{ij}$ est le tenseur des déformations de Green-Lagrange. Le principe du travail virtuel (Eq. 2.11) dit que la somme des travaux virtuels internes est égale à la somme des travaux virtuels externes (\mathcal{R}_{ext}). Dans le cas de notre modèle, les variations dimensionnelles liées au retrait de séchage étant d'origine internes, et non le fruit de forces extérieures, aucune condition limite n'est appliquée pour la partie mécanique, le principe du travail virtuel s'écrit donc :

$$\int_{tV} {}^{t+\Delta t} S_{ij} \delta {}^{t+\Delta t} \epsilon_{ij} d^t V = 0 \quad (2.12)$$

Il est possible de décomposer chacun de ces deux termes comme la somme d'un terme connu et d'un incrément inconnu :

$${}^{t+\Delta t}S_{ij} = {}^tS_{ij} + \Delta_t S_{ij} = {}^tT_{ij} + \Delta_t S_{ij} \quad (2.13)$$

$${}^{t+\Delta t}\epsilon_{ij} = {}^t\epsilon_{ij} + \Delta_t \epsilon_{ij} = \Delta_t \epsilon_{ij} \quad (2.14)$$

où ${}^tT_{ij}$ est le tenseur des contraintes de Cauchy-Lagrange et ${}^t\epsilon_{ij} = 0$.

La déformation s'exprime :

$${}^{t+\Delta t}\epsilon_{ij} = \frac{1}{2}(\Delta_t u_{i,j} + \Delta_t u_{j,i} + \Delta_t u_{k,i} \Delta_t u_{k,j}) \quad (2.15)$$

L'incrément de déformation s'écrit alors :

$$\Delta_t \epsilon_{ij} = \frac{1}{2}(\Delta_t u_{i,j} + \Delta_t u_{j,i}) + \frac{1}{2} \Delta_t u_{k,i} \Delta_t u_{k,j} \quad (2.16)$$

On définit alors les incréments de déformations linéaires et non-linéaires :

$$\Delta_t e_{ij} = \frac{1}{2}(\Delta_t u_{i,j} + \Delta_t u_{j,i}) \quad (2.17)$$

$$\Delta_t \eta_{ij} = \frac{1}{2} \Delta_t u_{k,i} \Delta_t u_{k,j} \quad (2.18)$$

L'incrément de déformation et l'incrément de déformation virtuel en sont déduits :

$$\Delta_t \epsilon_{ij} = \Delta_t e_{ij} + \Delta_t \eta_{ij} \quad (2.19)$$

$$\delta \Delta_t \epsilon_{ij} = \delta \Delta_t e_{ij} + \delta \Delta_t \eta_{ij} \quad (2.20)$$

Le principe du travail virtuel devient alors :

$$\int_{tV} \Delta_t S_{ij} \delta \Delta^{t+\Delta t} \epsilon_{ij} d^tV + \int_{tV} {}^tT_{ij} \delta \Delta_t e_{ij} d^tV + \int_{tV} {}^tT_{ij} \delta \Delta_t \eta_{ij} d^tV = 0 \quad (2.21)$$

Le terme $\int_{tV} \Delta_t S_{ij} \delta \Delta^{t+\Delta t} \epsilon_{ij} d^tV$ est alors linéarisé par un développement en série de Taylor en négligeant les termes d'ordre supérieur [54] :

$$\begin{aligned} \int_{tV} \Delta_t S_{ij} \delta \Delta^{t+\Delta t} \epsilon_{ij} d^tV &= \int_{tV} \frac{\partial \Delta_t S_{ij}}{\partial {}^{t+\Delta t}\epsilon_{kl}} \Delta_t \epsilon_{kl} \delta (\Delta_t e_{ij} + \Delta_t \eta_{ij}) d^tV \\ &= \int_{tV} \frac{\partial \Delta_t S_{ij}}{\partial {}^{t+\Delta t}\epsilon_{kl}} (\Delta_t e_{kl} + \Delta_t \eta_{kl}) \delta (\Delta_t e_{ij} + \Delta_t \eta_{ij}) d^tV \end{aligned} \quad (2.22)$$

Ici, les termes non-linéaires $\delta\Delta_t\eta_{ij}$ et $\Delta_t\eta_{kl}$ peuvent être négligés. Le premier terme de la série de Taylor $\frac{\partial\Delta_t S_{ij}}{\partial t+\Delta t\epsilon_{kl}}$ est le tenseur de rigidité ${}^tC_{ijkl}$. Le principe du travail virtuel linéarisé peut alors être écrit :

$$\int_{tV} {}^tC_{ijkl}\Delta_t\epsilon_{kl}\delta\Delta_t\epsilon_{ij}d^tV + \int_{tV} {}^tT_{ij}\delta\Delta_t\epsilon_{ij}d^tV + \int_{tV} {}^tT_{ij}\delta\Delta_t\eta_{ij}d^tV = 0 \quad (2.23)$$

En raison de la linéarisation du principe du travail virtuel, il est nécessaire de réaliser une étape d'itération durant laquelle la résolution est répétée jusqu'à ce que l'incrément virtuel de déformation devienne négligeable devant une certaine tolérance. L'équation résolue pour $k = 1, 2, 3, \dots$, est :

$$\int_{t+\Delta tV^{(k-1)}} {}^tC_{ijkl}^{(k-1)}\Delta_t\epsilon_{kl}^{(k)}\delta\Delta_t\epsilon_{ij}d^{t+\Delta t}V + \int_{t+\Delta tV^{(k-1)}} {}^tT_{ij}^{(k-1)}\delta\Delta_t\epsilon_{ij}^{(k-1)}d^{t+\Delta t}V \quad (2.24)$$

$$+ \int_{t+\Delta tV^{(k-1)}} {}^tT_{ij}^{(k-1)}\delta\Delta_t\eta_{ij}^{(k)}d^{t+\Delta t}V = 0$$

L'équation 2.23 est la formulation variationnelle sur laquelle l'algorithme va itérer pour calculer les déformations de la géométrie à chaque incrément de temps durant la simulation.

Dans le modèle présenté dans ce chapitre, les variations dimensionnelles liées au retrait de séchage sont d'origine interne et induites par la variation de la teneur en eau dans le matériau. Une méthode a été développée pour prendre en compte le retrait par un couplage entre la teneur en eau du matériau et la partie mécanique du modèle.

2.2.2 Prise en compte des variations dimensionnelles liées au retrait de séchage

Afin de modéliser correctement le retrait de séchage, il est nécessaire de connaître le comportement du matériau lors du séchage. Comme présenté dans le premier chapitre, la méthode la plus courante pour quantifier le retrait est de mesurer la variation de longueur d'un échantillon en fonction de la teneur en eau pendant un séchage lent pour que la teneur en eau soit uniforme. La courbe obtenue grâce à ces valeurs mesurées tout au long du séchage est la courbe de Bigot. Un exemple de courbe de Bigot obtenue sur une pâte de porcelaine est présentée sur la Fig. 2.3, où il est donc possible d'observer la teneur en eau en base sèche d'un échantillon en fonction de son retrait, lui aussi calculé par rapport à la longueur finale.

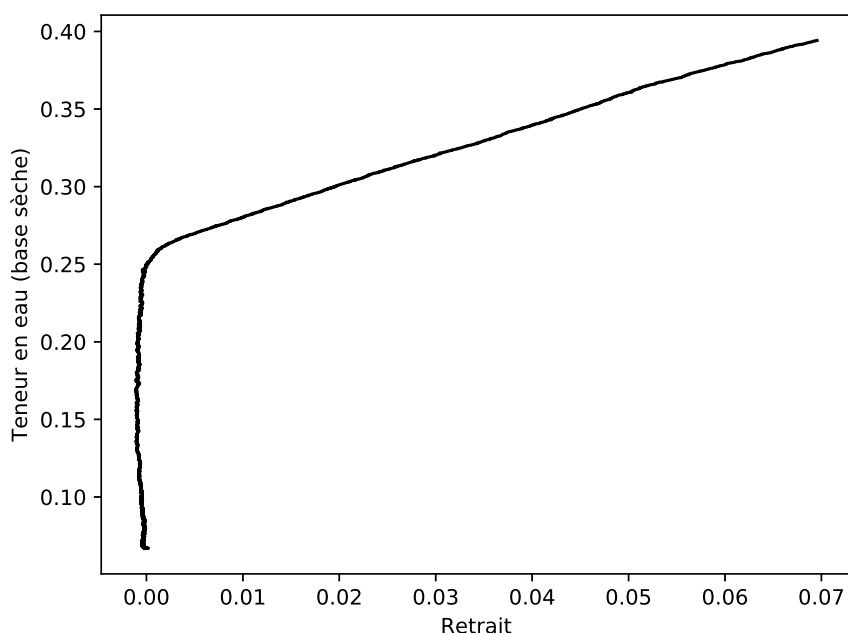


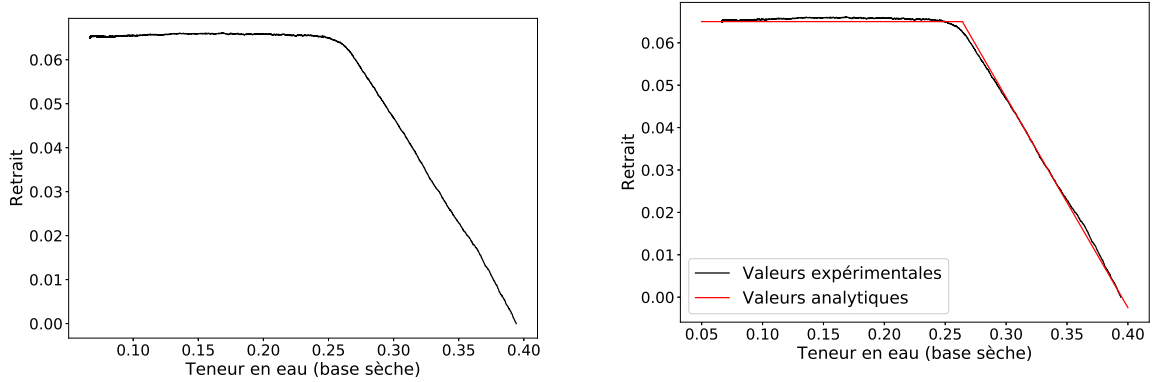
Figure 2.3: Exemple d'une courbe de Bigot obtenue sur une pâte de porcelaine.

Cette courbe étant obtenue avec le retrait calculé par rapport à la longueur sèche elle ne peut pas être utilisée pour modéliser le retrait de séchage. Il est pour cela nécessaire de calculer le retrait de séchage par rapport à la longueur initiale de l'échantillon. Le retrait (R_{lin}) est donc calculé avec la formule :

$$R_{lin} = \frac{L_i - L}{L_i} \quad (2.25)$$

où L est la longueur du produit à un instant t , et L_i est la longueur initiale du produit. Le retrait de séchage est ici calculé par rapport à la longueur initiale de l'échantillon. Une courbe comme celle présentée sur la Fig. 2.4(a) peut alors être obtenue.

À partir de cette courbe il est possible de déterminer le retrait comme une déformation à appliquer à chaque pas de temps en fonction de la quantité d'eau évaporée entre un instant $t - 1$ et un instant t . Afin de pouvoir calculer cette valeur, il est nécessaire d'utiliser une expression analytique du retrait en fonction de la teneur en eau. Une manière directe de le faire est de considérer que la courbe présente deux sections linéaires que l'on peut modéliser par deux droites, comme illustré sur la Fig 2.4(b). Les équations des droites obtenues, dont un exemple est donné par l'Eq. 2.26, sont alors utilisées pour déterminer la valeur de déformation à appliquer.



(a) Courbe expérimentale.

(b) Courbe expérimentale et approximation par deux droites.

Figure 2.4: Courbes de retrait de séchage par rapport à la longueur initiale présentées en fonction de la teneur en eau base sèche.

$$\begin{cases} R_{lin} = 0,065 \quad \forall X < 0,264 \\ R_{lin} = -6,87 \times 10^{-6} + 0,196 \quad \forall X \geq 0,264 \end{cases} \quad (2.26)$$

L'Eq. 2.27 permet de calculer alors un nombre adimensionnel décrivant la variation dimensionnelle liée au retrait de séchage du produit entre un instant $t - 1$ et un instant t , le coefficient de retrait :

$$L_r = 1 - \left(\frac{(1 - R_{lin}(^tX)) - (1 - R_{lin}(^{t-1}X))}{1 - R_{lin}(^tX)} \right) \quad (2.27)$$

où tX et ^{t-1}X sont les teneurs en eau locales aux incréments de temps t et $t - 1$. Ce nombre apparaît dans le tenseur des déformations induites par le retrait :

$${}_{t-1}^t \epsilon^{retrait} = \begin{bmatrix} L_r & 0 & 0 \\ 0 & L_r & 0 \\ 0 & 0 & L_r \end{bmatrix} \quad (2.28)$$

Le tenseur présenté sur l'Eq. 2.28 permet de modéliser les déformations liées à un retrait de séchage isotrope. Ce tenseur est calculé localement, c'est-à-dire pour chaque noeud du maillage. Il est aussi possible de modéliser les déformations liées à un séchage anisotrope en utilisant des équations de retrait différentes en fonction de la direction, ce qui donnera des valeurs de L_r différentes sur la diagonale du tenseur.

Le tenseur des déformations liées au retrait ${}_{t-1}^t \epsilon^{retrait}$ intervient dans le calcul du tenseur

du gradient de déformation total, définit par l'expression :

$${}^tF^{total} = {}^tF \cdot {}^{t-1}\epsilon^{retrait} \quad (2.29)$$

Le tenseur du gradient de déformation total est utilisé pour le calcul du tenseur des contraintes de Cauchy-Lagrange, à travers l'expression suivante :

$${}^tT_{ij} = {}^tF_{ik}^{total} \cdot {}^tS_{kl} \cdot {}^tF_{jl}^{total} \cdot {}^tJ^{total\top} \quad (2.30)$$

où ${}^tS_{kl}$ est le second tenseur de Piola Kirchoff et ${}^tJ^{total}$ est le jacobien incluant la déformation liée au retrait pris lors du dernier incrément défini tel que :

$${}^tJ^{total} = {}^tJ \det({}^{t-1}\epsilon^{retrait}) \quad (2.31)$$

Le couplage entre la partie mécanique et la teneur en eau est donc assuré par l'intégration d'un tenseur des déformations liées au retrait (${}^{t-1}\epsilon^{retrait}$) qui intervient dans le calcul du tenseur des contraintes de Cauchy-Lagrange qui lui même apparaît dans la formulation variationnelle de la partie mécanique du modèle (Eq. 2.23).

2.3 Résolution numérique du modèle

La méthode de résolution d'un modèle numérique peut varier en fonction du modèle et de ses conditions de convergence. Cette partie présente l'algorithme de résolution utilisé pour le modèle multiphysique qui a été présenté.

2.3.1 Fonctionnement général de la méthode de résolution

La Fig. 2.5 schématise de manière simplifiée l'algorithme de résolution. Cet algorithme est basé sur la méthode de Newton-Raphson, et consiste en deux boucles imbriquées.

- Une boucle pour incrémenter le temps : cette boucle fait avancer les incréments de temps de la simulation. C'est elle qui fait évoluer la résolution du temps t au temps $t + \Delta t$.
- Une boucle de convergence itérative : cette boucle est exécutée à chaque pas de temps, et continue jusqu'à ce que la solution calculée pour la formulation variationnelle du problème converge. Elle permet d'améliorer la stabilité du modèle en limitant les risques de divergence.

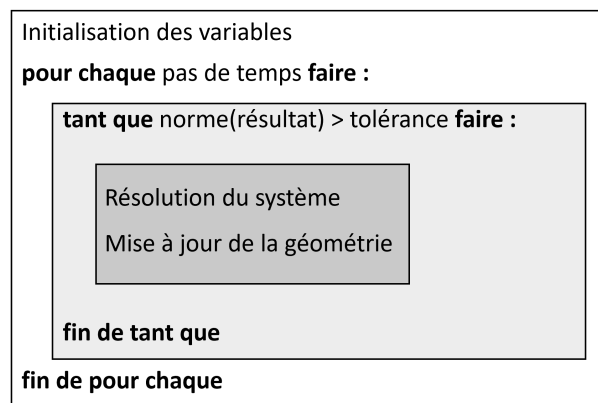


Figure 2.5: Schématisation simplifiée de l'algorithme de résolution.

La formulation variationnelle pour laquelle la solution est calculée dans la boucle de convergence itérative est la somme de la formulation variationnelle définie pour les transferts de masse et de chaleur (Eq. 2.8) et de la formulation variationnelle définie pour la partie mécanique (Eq. 2.23).

2.3.2 Description des étapes de l'algorithme

Chacune des étapes de l'algorithme joue un rôle précis dans la convergence du modèle vers un résultat fiable. Dans cette partie, chacune d'elles est détaillée afin d'offrir une bonne compréhension de la démarche de résolution de l'algorithme.

Initialisation des variables

La première étape d'un algorithme de résolution de modèle numérique est l'initialisation des variables nécessaires pour le calcul. Elle est importante car, pour être capable de calculer les grandeurs à un incrément donné, l'algorithme doit connaître les valeurs de ces grandeurs à l'incrément précédent. Le rôle de cette étape est donc de fournir un point de départ à l'algorithme.

L'étape d'initialisation débute au lancement de l'algorithme et attribue une valeur initiale aux différentes variables nécessaires au calcul du premier incrément de temps. Des valeurs initiales pour la température, la concentration et le déplacement sont donc donnés ainsi qu'une valeur pour le tenseur du gradient de déformation 0F et pour son jacobien 0J . Cette étape est résumée dans l'Algorithme 1.

Algorithm 1 Initialisation des variables

- 1: ${}^0T = T_{init}$
 - 2: ${}^0C = C_{init}$
 - 3: ${}^0\epsilon^{retrait} = \epsilon_{init}^{retrait}$
 - 4: ${}^0F^{total} = I$
 - 5: ${}^0J^{total} = 1$
-

Résolution du modèle

La résolution du modèle permet d'obtenir les valeurs de température, de concentration et de déplacement pour chaque incrément de temps. Pour chaque incrément de temps, une boucle itérative est réalisée où une solution de la formulation variationnelle est calculée. L'algorithme met alors à jour les grandeurs puis modifie la géométrie grâce à la technique des éléments finis lagrangiens-eulériens arbitraires. Cette technique permet au maillage à l'intérieur de la géométrie de se déplacer arbitrairement pour optimiser la forme des éléments, tandis que le maillage aux frontières se déplace en respectant la géométrie afin de conserver des conditions aux limites bien appliquées. Dans le cas de notre modèle cette technique a été réduite à une formulation par éléments finis basée sur le modèle lagrangien en assimilant la déformation du maillage au mouvement du

matériau.

A la fin de chaque itération la norme de chacune des grandeurs obtenues est comparée à une tolérance. Si une de ces normes est supérieure à la tolérance alors une nouvelle solution est calculée, et ce jusqu'à ce que le résultat converge, et que les normes soient inférieures à la tolérance. La solution alors obtenue correspond aux champs de température, de concentration et de déplacement pour l'incrément actuel. A partir du champ de concentration dans la géométrie il est alors possible de calculer le tenseur des déformations liées au retrait ${}^{t+\Delta t}_t \epsilon^{retrait}$, qui correspond au retrait provoqué par la variation de concentration entre t et $t + \Delta t$. Le tenseur du gradient de déformation total ${}^{t+\Delta t}_0 F_{ik}^{total}$ et son jacobien ${}^{t+\Delta t}_0 J^{total}$ sont alors calculés et utilisés à l'incrément de temps suivant pour le calcul de la déformation de la géométrie. L'Algorithme 2 résume la méthode de résolution décrite.

Algorithm 2 Résolution du système

- 1: **while** $t \leq$ durée de simulation **do**
 - 2: **while** norme de chaque grandeur calculée \geq tolérance **do**
 - 3: Résolution de la formulation variationnelle (Eq. 2.23)
 - 4: Mise à jour de la température : ${}^t T \leftarrow {}^t T + {}^{t+\Delta t} T$
 - 5: Mise à jour de la concentration : ${}^t C \leftarrow {}^t C + {}^{t+\Delta t} C$
 - 6: Mise à jour du déplacement : ${}^t u_{ij} \leftarrow {}^t u_{ij} + {}^{t+\Delta t}_t u_{ij}$
 - 7: Modification de la géométrie avec Algorithme 3
 - 8: **end while**
 - 9: Calcul du tenseur des déformations lié au retrait : ${}^{t+\Delta t}_t \epsilon^{retrait}$
 - 10: Calcul du tenseur du gradient de déformation total : ${}^{t+\Delta t}_0 F_{ik}^{total} = {}^{t+\Delta t}_0 F_{ij} {}^{t+\Delta t}_t \epsilon_{jk}^{retrait}$
 - 11: Mise à jour de son jacobien : ${}^{t+\Delta t}_0 J^{total} = {}^{t+\Delta t}_0 J \det({}^{t+\Delta t}_t \epsilon^{retrait})$
 - 12: **end while**
-

Mise à jour de la géométrie

Cette étape, située à chaque fin d'itération, fait la particularité du modèle. L'algorithme calcule le tenseur du gradient de déformation de l'itération ${}^{t+\Delta t}_t F_{ij}$ et son jacobien ${}^{t+\Delta t}_t J$. Il est alors possible d'additionner les pré-déformations : le tenseur du gradient de déformation total ${}^{t+\Delta t}_0 F_{ik}^{total}$ et son jacobien ${}^{t+\Delta t}_0 J^{total}$ sont mis à jours pour l'itération suivante. Le déplacement calculé lors de l'itération ${}^{t+\Delta t}_t u_{ij}$ est ensuite affecté au maillage. Cette étape est résumée dans l'Algorithme 3.

Algorithm 3 Mise à jour de la géométrie

- 1: Calcul du tenseur du gradient de déformation de l'itération: ${}^{t+\Delta t}F_{ij} = I + \nabla {}^{t+\Delta t}u_{ij}$
- 2: Calcul de son jacobien : ${}^{t+\Delta t}J = \det({}^{t+\Delta t}F_{ij})$
- 3: Mise à jour du tenseur du gradient de déformation total : ${}^{t+\Delta t}F_{ik}^{total} \leftarrow {}^{t+\Delta t}F_{ij} \cdot {}^{t+\Delta t}F_{ik}^{total}$
- 4: Mise à jour de son jacobien : ${}^{t+\Delta t}J^{total} \leftarrow {}^{t+\Delta t}J \cdot {}^{t+\Delta t}J^{total}$
- 5: Déplacement du maillage à partir des valeurs de ${}^{t+\Delta t}u_{ij}$

2.4 Validation du modèle

Dès lors qu'un modèle numérique est construit il est nécessaire d'évaluer sa précision par rapport à des données expérimentales ou des solutions analytiques. Une fois ce travail réalisé il est alors possible de valider son utilisation dans un contexte donné. Dans le cas du modèle présenté ici, la validation consistera dans un premier temps à vérifier si la bonne valeur de la température humide est obtenue puis si la vitesse de séchage calculée est en accord avec la réalité expérimentale.

2.4.1 Obtention de la température humide

Une manière de s'assurer du bon fonctionnement du couplage des transferts de masse et de chaleur est d'évaluer la température de la surface exposée au séchage une fois qu'elle s'est stabilisée. La température alors atteinte par la surface est la température humide. Il s'agit de la température d'équilibre d'une petite quantité d'eau soumise à un séchage par convection. La chaleur nécessaire à l'évaporation est puisée dans l'air provoquant une diminution de la température qui est fonction des caractéristiques de l'air (température et humidité relative).

Une simulation simple utilisant le modèle numérique a été réalisée afin de calculer la température humide d'un cube de $2 \times 2 \times 2 \text{ cm}^3$. La géométrie et les conditions aux limites sont décrites par la Fig. 2.6. L'échantillon est soumis à un air de séchage à 30°C et 40% d'humidité relative et les valeurs des propriétés thermo-physiques du matériau sont extraites de la littérature.

L'échantillon est modélisé durant l'étape de séchage à vitesse constante, c'est-à-dire que l'activité de l'eau est fixée à 1 (la surface de l'échantillon se comporte comme une surface d'eau libre). La valeur de la température, après stabilisation, qui est relevée au centre de la surface supérieure de l'échantillon est de $19,84^\circ\text{C}$. À partir des propriétés de l'air de séchage il est possible de retrouver la valeur théorique de la température

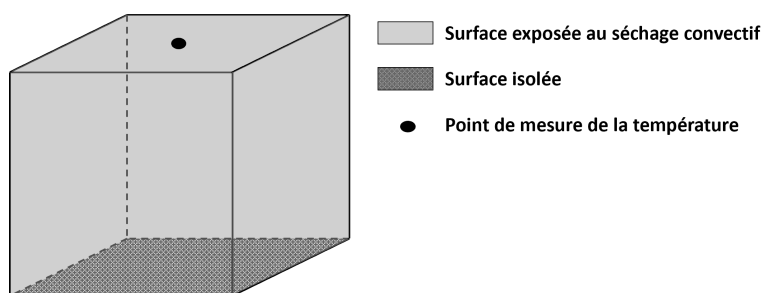


Figure 2.6: Schématisation de la géométrie et des conditions limites pour la simulation.

T_{air} (en °C)	HR (en %)	$T_{h,simulation}$ (en °C)	$T_{h,theorique}$ (en °C)
30	40	19,8	20,0
30	50	21,8	22,0
30	70	25,4	25,5
20	40	12,1	12,2
20	50	13,6	13,7
20	70	16,3	16,5

Table 2.1: Valeurs de température humide simulées et théoriques

humide en utilisant un diagramme psychrométrique. Le diagramme indique une température humide théorique d'environ 20 °C.

Plusieurs autres simulations ont été réalisées avec des propriétés différentes pour l'air de séchage afin de s'assurer de la fiabilité du modèle, et les résultats sont reportés dans le tableau 2.1. Les valeurs de température humide obtenues avec le modèle sont en bon accord avec la température humide théorique.

2.4.2 Suivi du séchage en fonction du temps

Une autre manière de valider le modèle de séchage convectif est de comparer la vitesse de séchage expérimentale d'un échantillon à celle obtenue par simulation. Cette méthode permet d'évaluer non seulement la fiabilité du modèle mais aussi la qualité des propriétés thermo-physiques insérées dans le modèle. Ainsi, pour cette étape de validation, les résultats seront obtenus en utilisant des propriétés précisément mesurées dans la littérature pour une pâte d'alumine [25].

Un échantillon cubique de pâte d'alumine a été suivi lors de son séchage dans une enceinte climatique à 30 °C et 50% d'humidité relative. La masse et la température de la surface ont été mesurées tout au long du séchage. Une simulation a été réalisée

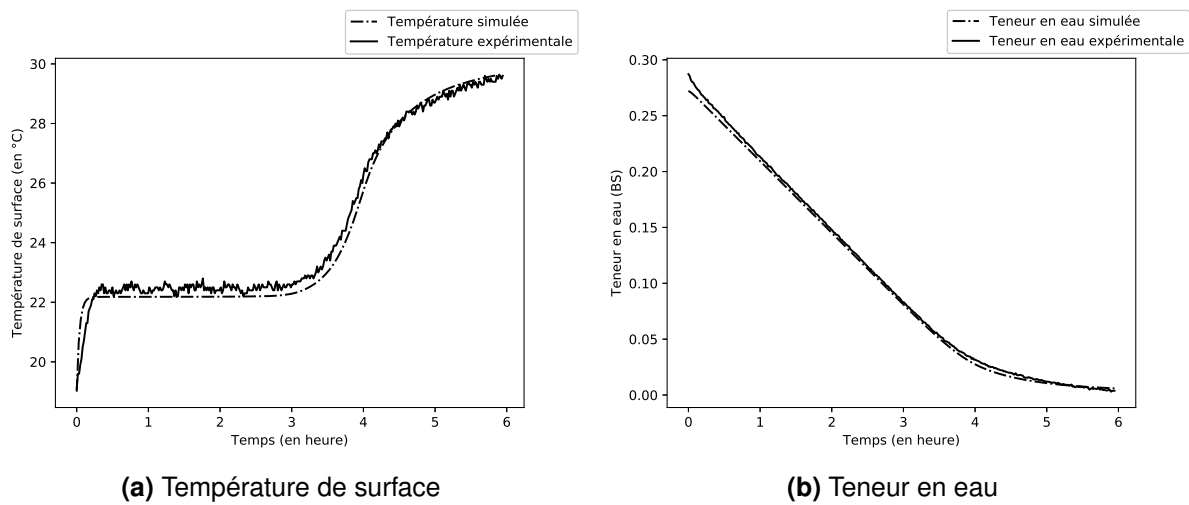


Figure 2.7: Comparaison de la cinétique de séchage d'un bloc d'alumine : expérimental vs modèle

prenant en compte les mêmes caractéristiques pour l'air de séchage et en utilisant les propriétés thermo-physique d'une pâte d'alumine telles que décrites dans le travail de S. Oumjadi [25]. Il est donc possible de tracer l'évolution de la teneur en eau et de la température avec les résultats de la simulation et de l'expérience.

La Fig. 2.7 présente la teneur en eau et la température de surface en fonction du temps, déterminées expérimentalement et pas modélisation. Le profil de température de surface (Fig. 2.7(a)) issu de la simulation est en bonne adéquation avec le profil de température de surface expérimental. De la même manière, le profil de teneur en eau (Fig. 2.7(b)) issu de la simulation est en bon accord avec le profil de teneur en eau expérimental.

À partir des résultats montrés sur la Fig. 2.7, il est possible de valider l'utilisation du modèle pour le calcul de la vitesse de séchage, ce qui correspond principalement au couplage entre les transferts de chaleur et de masse.

2.5 Conclusion

La construction du modèle numérique du séchage convectif d'une pâte céramique présenté dans ce chapitre a nécessité plusieurs étapes. Dans un premier temps nous avons posé quelques hypothèses permettant de simplifier le problème. Cette étape est importante car sans ces hypothèses le modèle serait trop complexe et nécessiterait une puissance et des temps de calcul trop important pour être intéressant. À partir des hypothèses, les lois de comportement internes du matériau ainsi que les conditions aux limites ont pu être déterminées. Un modèle multiphysique du séchage convectif avec un couplage fort entre les transferts de chaleur et de masse a été construit.

Dans le but d'obtenir un modèle plus fiable, une physique a été ajoutée pour modéliser les variations dimensionnelles liées au retrait de séchage. Pour cela la formulation lagrangienne actualisée, une méthode issue de la mécanique des milieux continus, a été utilisée. Cette méthode, couplée avec le calcul d'un tenseur des déformations liées au retrait, permet de faire varier la géométrie et le maillage au cours de la simulation.

Le modèle obtenu a été validé pour la modélisation du séchage convectif de produits céramiques grâce à des valeurs théoriques de température humide ainsi que des suivis de séchage issus de la littérature.

3

Mesure des propriétés physiques pour la modélisation du séchage d'une pâte pour le robocasting

Sommaire

3.1	Étude de l'influence des conditions extérieures sur le séchage d'un produit céramique	67
3.2	Présentation de la pâte de porcelaine	71
3.2.1	Étude de la taille et de la forme des grains	71
3.2.2	Analyse thermique différentielle et thermogravimétrie	72
3.3	Mesure des propriétés physiques de la pâte de porcelaine	74
3.3.1	Estimation du coefficient de diffusion équivalent	74
3.3.2	Activité de l'eau	78
3.3.3	Mesure du coefficient d'échange par convection	80
3.3.4	Propriétés d'entrée du modèle	81
3.4	Conclusion	83

L'OBJECTIF de ce chapitre est de présenter l'étude menée sur la pâte de porcelaine utilisée lors de cette thèse. Le modèle est dans un premier temps mis en oeuvre pour montrer l'influence des paramètres de la pâte et de l'air sur le séchage d'un produit céramique en cru et l'importance d'obtenir des données d'entrée fiables pour le modèle. La pâte est ensuite analysée pour obtenir des informations sur sa composition et sa granulométrie, permettant ainsi de mieux comprendre et expliquer son comportement lors du séchage. Enfin les méthodes de mesure utilisées pour déterminer les valeurs des propriétés physiques et les résultats obtenus sont présentés.

3.1 Étude de l'influence des conditions extérieures sur le séchage d'un produit céramique

L'influence des conditions extérieures sur le séchage d'un produit céramique a été étudiée avec l'aide du modèle. Les simulations réalisées se basent sur un cube de $2 \times 2 \times 2 \text{ cm}^3$ de pâte d'alumine dont les propriétés ont été extraites de la littérature [25]. Ce choix a été fait car cette pâte présente un comportement lors du séchage en accord avec la description théorique présentée dans le chapitre 1.

Les conditions extérieures imposées à un produit céramique lors de son séchage sont la température de l'air, l'humidité relative et le coefficient d'échange par convection h . La valeur de h dépend du flux d'air auquel est exposé le produit. L'objectif est ici d'observer si une faible variation de la valeur du coefficient d'échange par convection provoque une variation significative du comportement au séchage d'un produit céramique. Les valeurs utilisées pour les simulations sont $h = 35 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$, $h = 40 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$, et

$$h = 45 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}.$$

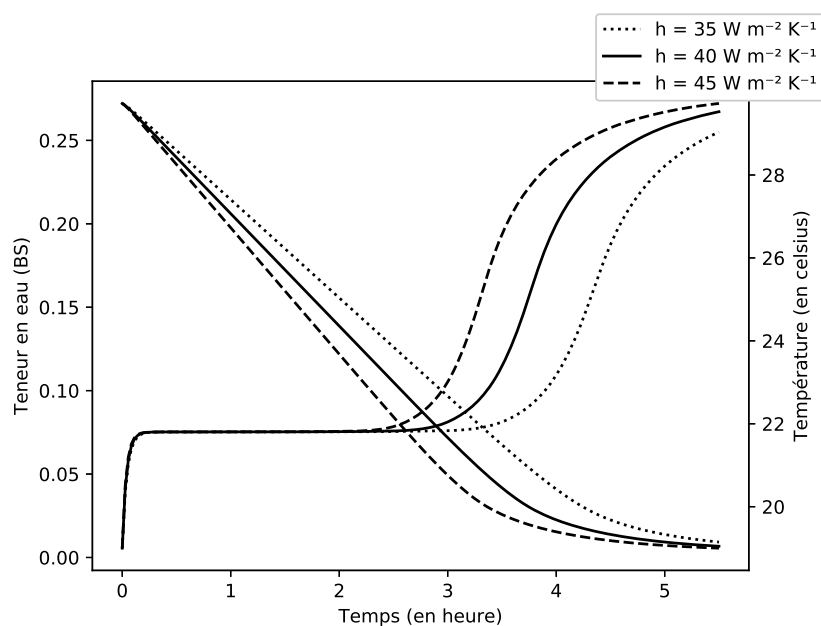


Figure 3.1: Teneur en eau en base sèche et température de surface pendant le séchage pour différentes valeurs de h avec un air de séchage à 30 °C et 50% HR.

La Fig. 3.1 présente l'évolution de la teneur en eau et de la température de la surface obtenues par modélisation. Dans les trois situations, après un régime transitoire d'environ 10 minutes, la température de surface se stabilise à une valeur constante pendant un période qui correspond à l'étape de séchage à vitesse constante (CRP). Cette période est aussi visible sur la courbe de teneur en eau qui présente une partie linéaire. Après la CRP, la deuxième augmentation de température est expliquée par la diminution de la teneur en eau à la surface du produit qui provoque la diminution de l'activité en dessous de 1 et qui limite le flux d'eau évaporée, selon les Eq. 1.10 et 1.11. Cette diminution de la quantité d'eau évaporée s'accompagne de l'augmentation de la température selon l'Eq. 1.12.

Une augmentation du coefficient d'échange par convection entraîne une accélération du séchage. Ainsi, une augmentation de h de 35 à 45 $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ réduit la durée de la CRP d'environ 30%, ce qui peut aussi être déduit de l'Eq. 1.10 puisque les coefficients de transfert de masse et de chaleur sont proportionnels (Eq. 1.13).

Le séchage d'un produit céramique est aussi très sensible à l'humidité relative de l'air. La Fig. 3.2 présente la teneur en eau en base sèche en fonction du temps pour trois valeurs différentes d'humidité relative de l'air de séchage. La durée de la CRP est

réduite par un facteur 2 pour un changement de $HR = 75\%$ à $HR = 50\%$, et encore de $HR = 50\%$ à $HR = 25\%$. L'augmentation de l'humidité relative de l'air de séchage est une méthode connue pour diminuer la vitesse du séchage d'un produit céramique. Une connaissance précise des valeurs de h et de HR est nécessaire pour obtenir des prédictions réalistes avec le modèle.

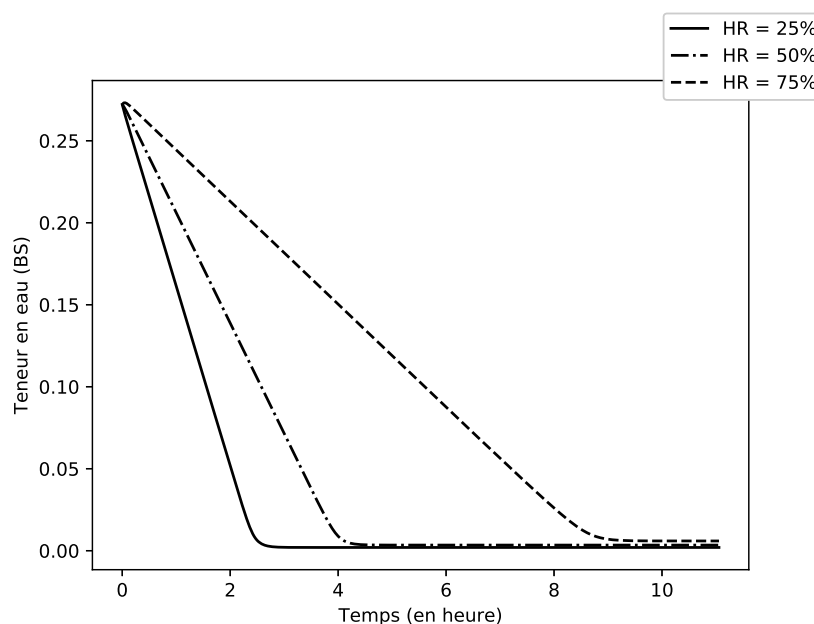


Figure 3.2: Teneur en eau en base sèche pendant le séchage pour différentes valeurs de HR avec un air de séchage à $30\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Le rôle du coefficient de diffusion équivalent dans l'évolution de la teneur en eau d'un échantillon au cours du séchage a ensuite été étudié. La géométrie utilisée pour les simulations est un pavé droit de $1,5 \times 1,5 \times 4,0\text{ cm}^3$. Cette forme a été utilisée dans une étude précédente qui a permis mettre en évidence expérimentalement des gradients de teneur en eau [52]. Seule la face supérieure de $1,5 \times 1,5\text{ cm}^2$ est exposée au séchage de manière à obtenir un transfert de masse en 1D. Les surfaces qui ne sont pas exposées au séchage échangent toutefois de la chaleur avec le milieu extérieur. Plusieurs simulations avec des valeurs de D_w décroissantes ont été utilisées pour simuler le séchage complet de cet échantillon et la teneur en eau a été suivie en 9 points le long de la hauteur de l'échantillon.

La Fig. 3.3 présente les résultats des simulations. Les résultats obtenus pour des valeurs de $D_w > 10^{-6}\text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ne sont pas montrés, les distributions de teneur en eau calculées étant similaire à celle de la Fig. 3.3(a), c'est-à-dire une teneur uniforme pendant toute la durée du séchage. Pour $D_w = 10^{-7}\text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, la Fig. 3.3(b) révèle une teneur

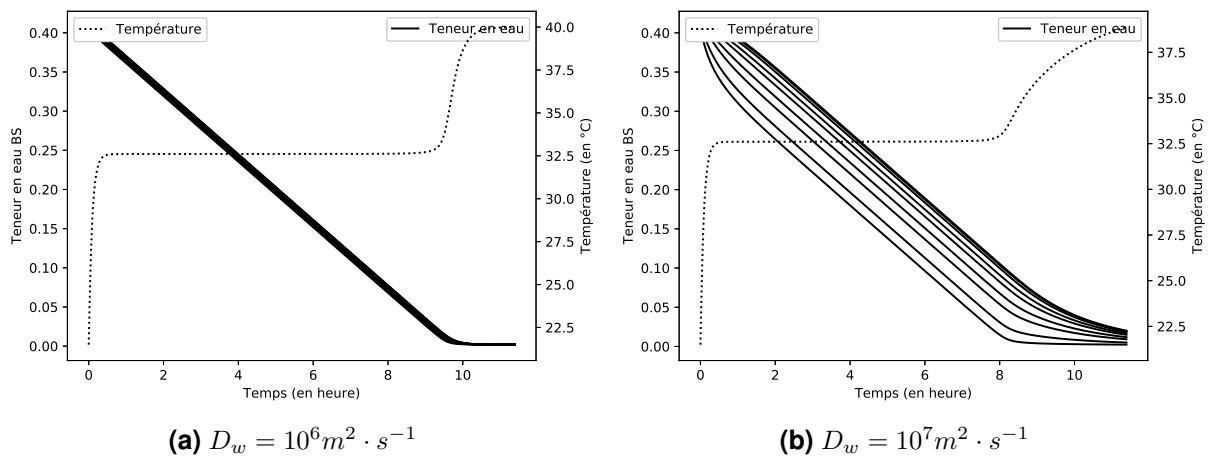
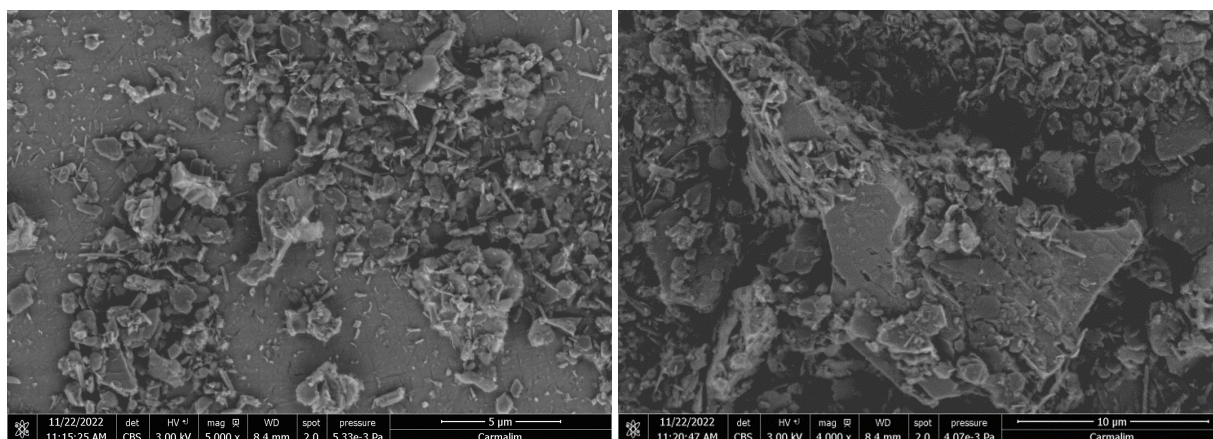


Figure 3.3: Teneur en eau en fonction du temps, à 9 positions différentes dans la hauteur de l'échantillon, avec un air de séchage à 40°C et 22,5% HR. La courbe supérieure correspond à la base de l'échantillon. La courbe inférieure correspond à la surface exposée au séchage.

en eau non-uniforme. La littérature montre que la valeur du coefficient de diffusion équivalent d'une pâte peut varier entre 10^{-6} et $10^{-9} m^2 \cdot s^{-1}$ en fonction de sa teneur en eau et des caractéristiques du réseau poreux [25]. Il est donc important d'estimer expérimentalement ce coefficient afin de modéliser de manière réaliste le transfert de masse dans le matériau au cours du séchage.



(a) Plaquettes de kaolinite et autres grains correspondant au premier mode de distribution. (b) Grain appartenant au second mode de distribution.

Figure 3.4: Images obtenues au MEB environnemental sur un échantillon de pâte EZPrint3D-E.

3.2 Présentation de la pâte de porcelaine

Les travaux présentés au travers de cette thèse ont été réalisés avec une pâte de porcelaine commercialisée par Imerys dont la référence est EZPrint3D-E. Afin de mieux comprendre les propriétés et le comportement au séchage de ce matériau, plusieurs analyses ont été réalisées.

3.2.1 Étude de la taille et de la forme des grains

La pâte utilisée dans cette étude est une pâte de porcelaine, qui contient donc de la kaolinite dont les grains ont une forme fortement anisométrique puisqu'ils se présentent sous forme de plaquettes. Il est donc important d'étudier la morphologie et la distribution en taille des grains contenus dans la pâte afin de pouvoir expliquer les phénomènes observés lors de l'extrusion et de séchage.

Une observation des grains a été réalisée dans un microscope électronique à balayage (MEB). Les images présentées sur la Fig. 3.4 ont été obtenues sur un échantillon de poudre de pâte séchée, dispersée dans de l'éthanol puis désagrégée dans un bain à ultrasons. La pâte présente un grand nombre de plaquettes dont la taille est généralement comprise entre 1 et 2 μm . Il peut également y être observé de fines aiguilles dont la longueur est inférieure à 1 μm . La pâte présente également des grains de grande taille, généralement comprise entre 5 et 20 μm .

La distribution granulométrique a été étudiée à l'aide d'un granulomètre laser (HORIBA LA-950) avec une base de distribution en volume. Les résultats reportés sur la Fig. 3.5

$D_{0,1}$	$D_{0,5}$	$D_{0,9}$
1,06	2,59	22,45

Table 3.1: Diamètres seuils mesurés lors de l'analyse granulométrique en volume (en μm)

montrent une distribution de grains bimodale, avec un premier mode centré sur $2 \mu\text{m}$ et un deuxième sur $11 \mu\text{m}$. Le Tableau 3.1 présente les diamètres seuils mesurés lors de l'analyse. La pâte présente un $D_{0,5}$ de $2,59 \mu\text{m}$.

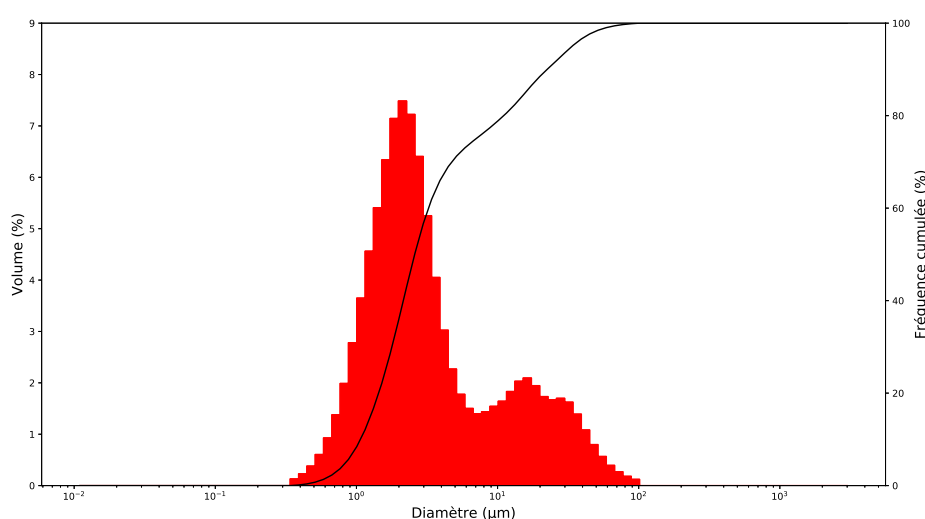


Figure 3.5: Résultat de l'analyse granulométrique de la pâte EZPrint3D-E en volume.

La présence de plaquettes de kaolinite, attendue puisqu'il s'agit d'un pâte de porcelaine, peut avoir un impact sur le retrait des produits mis en forme par robocasting. Il peut donc être intéressant de quantifier la proportion de kaolinite dans la pâte.

3.2.2 Analyse thermique différentielle et thermogravimétrique

Une analyse thermique de la pâte étudiée a été réalisée afin de mieux cerner son évolution lors du traitement thermique. L'échantillon utilisé pour l'analyse a préalablement été séché dans une étuve.

Les résultats sont reportés sur la Fig. 3.6. La courbe de masse présente une première perte d'environ 0,5% aux alentours de 100°C qui correspond à l'évaporation de l'eau restante dans l'échantillon. Une grande perte de masse d'environ 7% est ensuite observée entre 450 et 750°C couplée à un pique endothermique à 520°C qui correspond

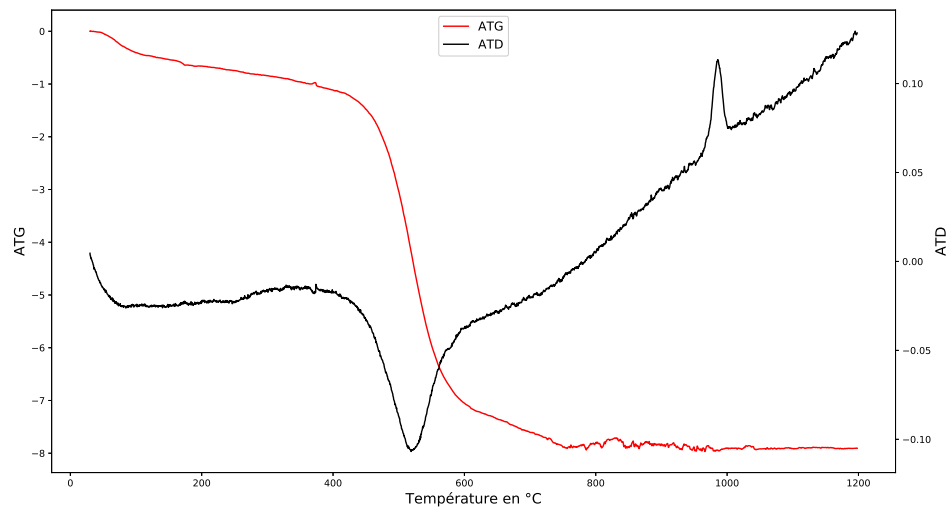


Figure 3.6: Résultats de l'analyse thermique différentielle et thermogravimétrique sur un échantillon de pâte EZPrint3D-E

à la deshydroxylation de la kaolinite présente dans la pâte. Un pic exothermique est finalement observé à 980 °C, souvent expliqué dans la littérature comme une réorganisation structurale de la métakaolinite.

La pâte se présente donc comme une pâte de porcelaine classique contenant environ 50% de kaolinite, estimé grâce à la perte de masse de 7% lors de sa deshydroxylation. Par ailleurs, l'analyse thermogravimétrique ne permet pas d'observer de perte de masse liée au départ de matière organique, ce qui peut indiquer que l'eau est l'unique solvant utilisé.

3.3 Mesure des propriétés physiques de la pâte de porcelaine

L'exploitation du modèle numérique pour prédire le comportement lors du séchage convectif d'un objet céramique en cru nécessite de connaître précisément les propriétés qui gouvernent les transferts de masse et de chaleur. Plusieurs méthodes permettant de mesurer le coefficient de diffusion, l'activité de l'eau et le coefficient d'échange par convection vont être présentées puis appliquées à la mesure de ces propriétés sur la pâte de porcelaine.

3.3.1 Estimation du coefficient de diffusion équivalent

La mesure du coefficient de diffusion équivalent (D_w) d'une pâte céramique est réalisée en suivant la distribution de la teneur en eau d'un échantillon à une échelle macroscopique pendant son séchage selon le protocole proposé par Oummadi [52].

La distribution de teneur en eau, à un temps de séchage précis, est obtenue en utilisant un échantillon de pâte cylindrique de 10 mm de diamètre et de 40 mm de hauteur. L'échantillon est placé dans une enceinte climatique (Weiss Technik LabEvent) à une température de 40 °C et 30% d'humidité relative. Seule une face est exposée au séchage, les autres faces sont couvertes d'un film en polyvinyl pour se rapprocher d'une situation de transfert en 1D. L'échantillon est retiré à un temps précis puis découpé en 4 sous-échantillons, comme illustré sur la Fig. 3.7, qui sont ensuite pesés et placés dans une étuve (Memmert) à 105 °C. Les sous-échantillons sont pesés une nouvelle fois 24h plus tard afin d'obtenir leur masse finale après évaporation de toute leur eau.

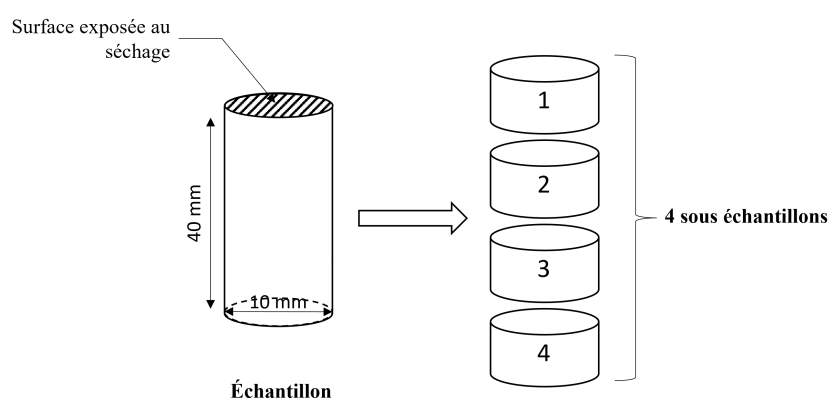


Figure 3.7: Représentation schématique de l'échantillon utilisé pour la mesure du coefficient de diffusion équivalent.

L'estimation du coefficient de diffusion équivalent nécessite de réaliser la mesure de la distribution de teneur en eau pour plusieurs durées de séchage. À partir de la distribution de teneur en eau, il est possible d'estimer une valeur pour le coefficient de diffusion équivalent. De manière à simplifier l'analyse, le transport de l'eau est considéré unidimensionnel. Le flux d'eau évaporée à la surface exposée au séchage ($x = 0$) s'écrit :

$$J_{x=0} = -D_w \frac{\partial C}{\partial x} \quad (3.1)$$

où D_w est le coefficient de diffusion équivalent en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, et C est la concentration en eau en $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ dans l'élément de volume proche de la surface. Une valeur approchée du coefficient de diffusion équivalent peut être obtenue par :

$$D_w = \frac{J_{x=0}}{\frac{\Delta C}{\Delta x}} \quad (3.2)$$

où $\frac{\Delta C}{\Delta x}$ est la différence de concentration entre les deux premiers sous-échantillons proches de la surface exposée au séchage. Cette approximation est utilisée même si dans la réalité le gradient de concentration local est probablement plus fort au niveau de la surface. Le flux d'eau $J_{x=0}$ correspond à la quantité d'eau évaporée par unité de surface exposée au séchage et par seconde. Il est calculé en utilisant la perte de masse totale de l'échantillon puisque seule la surface supérieure est exposée au séchage :

$$J_{x=0} = \frac{V \Delta C}{S \Delta t} \quad (3.3)$$

où ΔC est la variation de concentration moyenne dans l'échantillon entier sur la période Δt , S est l'aire de la surface exposée au séchage et V est le volume de l'échantillon.

Les temps de séchage, avant la détermination de la teneur en eau dans les sous échantillons, ont été fixés en suivant le séchage d'un échantillon pendant 100 h. Ensuite, le séchage des 12 échantillons pendant des temps échelonnés de 1 h à 100 h et la mesure de leur teneur en eau ont permis d'obtenir un suivi de l'évolution du profil de teneur en eau dans les échantillons, qui est présenté sur la Fig. 3.8. Sur ce graphique, le point 1 correspond à celui le plus proche de la surface exposée au séchage. L'apparition d'un très net gradient de teneur en eau peut être observée dès la première heure de séchage avant de s'estomper progressivement jusqu'à la courbe pour 6 h de séchage. Dès 9 h le gradient de teneur en eau entre les échantillons 1 et 2 augmente à nouveau pour atteindre un maximum vers 30 h. Le gradient diminue alors jusqu'à atteindre une teneur en eau uniforme à 100 h.

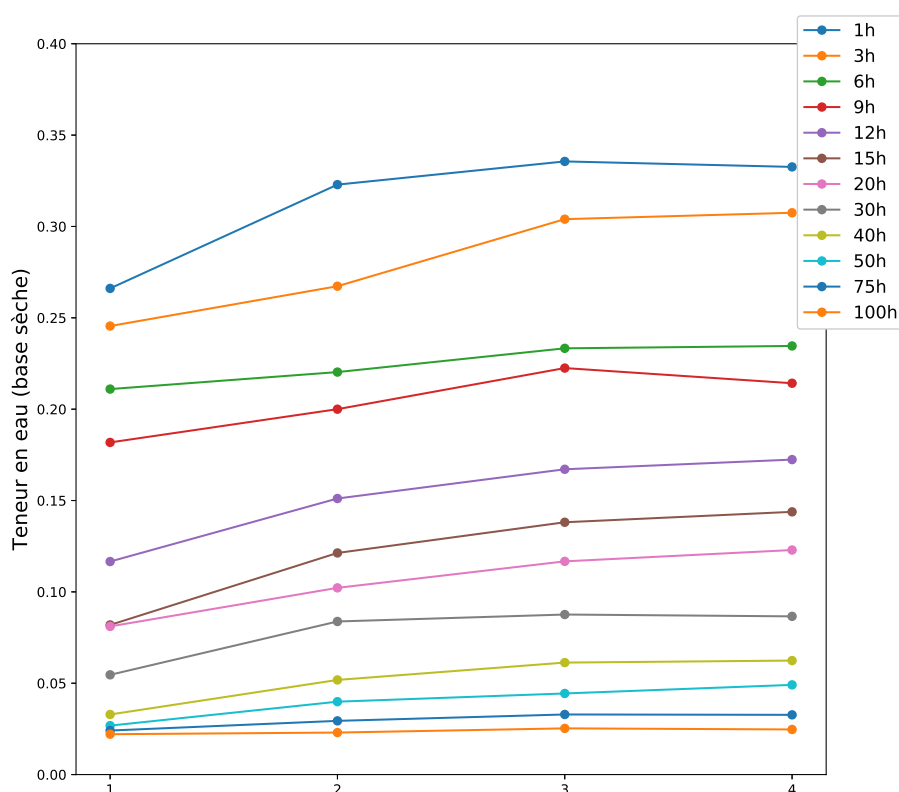


Figure 3.8: Évolution du profil de teneur en eau dans l'échantillon.

Un comportement similaire a déjà été observé dans la littérature dans des échantillons présentant deux distributions de tailles de pores [57]. Au début du séchage, les macropores proches de la surface exposée à l'air commencent à se vider ce qui provoque l'apparition d'un gradient de teneur en eau dans l'échantillon. Ce gradient provoque le transport de l'eau de l'intérieur de l'échantillon vers la surface, causant ainsi la diminution de la teneur en eau dans les zones éloignées de la surface. Les mésopores auront plutôt tendance à rester remplis jusqu'à ce que tous les macropores soient vides. Koptug et al. avancent que si la bimodalité dans la distribution en taille des pores est suffisamment prononcée, les forces capillaires seront telles que les mésopores à la surface de l'échantillon restent pleins jusqu'à ce que tous les macropores présents à l'intérieur du matériau soient vidés. Expérimentalement, cela se traduit par un écrasement progressif du profil de teneur en eau dans l'échantillon jusqu'à une teneur en eau quasi-uniforme et à une augmentation du coefficient de diffusion équivalent qui passe par un maximum. Une fois tous les macropores vidés, les mésopores se vident à leur

Temps (h)	$J_{x=0}$ (mol.m ⁻² .s ⁻¹)	$\frac{\Delta C}{\Delta x}$ (mol.m ⁻⁴)	D (m ² .s ⁻¹)
1	$2,56 \times 10^{-2}$	$4,10 \times 10^5$	$6,23 \times 10^{-8}$
3	$1,33 \times 10^{-2}$	$1,57 \times 10^5$	$8,46 \times 10^{-8}$
6	$1,51 \times 10^{-2}$	$6,72 \times 10^4$	$2,24 \times 10^{-7}$
9	$5,40 \times 10^{-3}$	$1,31 \times 10^5$	$4,10 \times 10^{-8}$
12	$1,41 \times 10^{-2}$	$2,49 \times 10^5$	$5,67 \times 10^{-8}$
15	$8,17 \times 10^{-3}$	$2,85 \times 10^5$	$2,87 \times 10^{-8}$
20	$2,50 \times 10^{-3}$	$1,52 \times 10^5$	$1,64 \times 10^{-8}$
30	$2,21 \times 10^{-3}$	$2,11 \times 10^5$	$1,05 \times 10^{-8}$
40	$2,09 \times 10^{-3}$	$1,37 \times 10^5$	$1,53 \times 10^{-8}$
50	$9,67 \times 10^{-4}$	$9,46 \times 10^4$	$1,02 \times 10^{-8}$
75	$3,30 \times 10^{-4}$	$3,83 \times 10^4$	$8,62 \times 10^{-9}$
100	$1,93 \times 10^{-4}$	$6,50 \times 10^3$	$2,96 \times 10^{-8}$

Table 3.2: Estimation du coefficient de diffusion équivalent D_w pour la pâte de porcelaine EZPrint3D-E à différents moments du séchage

tour créant un nouveau gradient de teneur en eau dans l'échantillon provoquant une nouvelle étape de transport de l'eau de l'intérieur du matériau vers la surface exposée au séchage. L'étude granulométrique de la pâte a révélé une distribution bimodale de la taille des grains, ce qui pourrait induire l'apparition de deux populations de tailles de pores.

Les valeurs obtenues pour le coefficient de diffusion équivalent et les grandeurs intermédiaires permettant de le calculer sont présentées dans le tableau 3.2. L'évolution de la valeur du coefficient de diffusion équivalent D_w avec la teneur en eau du matériau est présentée sur la Fig. 3.9. Le coefficient présente une augmentation avec la diminution de la teneur en eau jusqu'à atteindre un maximum à $2,3 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ pour environ 23% de teneur en eau. Il diminue ensuite jusqu'à atteindre des valeurs proches de $10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Ce profil d'évolution du coefficient de diffusion équivalent a été observé par Koptuyg et al. dans les matériaux comportant deux populations de tailles de pores [57].

À partir de ces résultats, il a été nécessaire de déterminer une loi empirique de D_w qui sera utilisée dans le modèle numérique. Cette loi, présentée sur la Fig. 3.9, a été obtenue en faisant la différence entre deux approximations analytiques de la fonction Heaviside :

$$D_w = \left(16 \times 10^{-8} + 14 \times 10^{-8} \tanh(33(X-0,20)) \right) - \left(12 \times 10^{-8} + 12 \times 10^{-8} \tanh(30(X-0,25)) \right) \quad (3.4)$$

où X est la teneur en eau de la pâte.

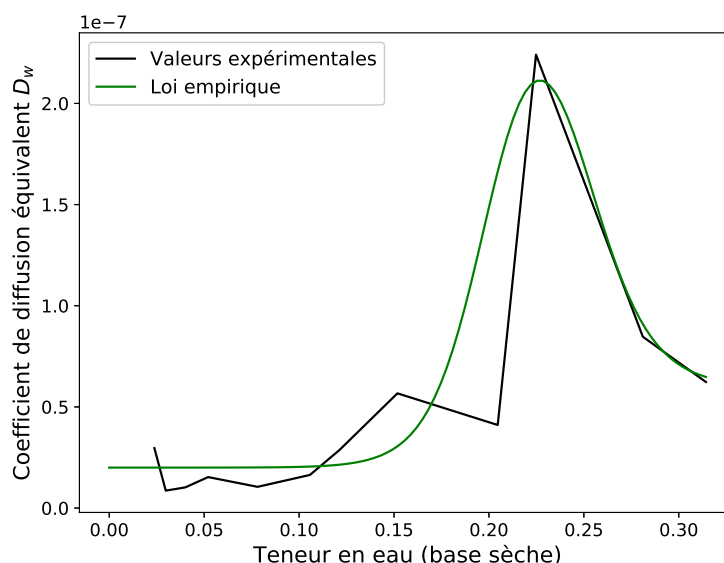


Figure 3.9: Évolution du coefficient de diffusion équivalent D_w en fonction de la teneur en eau dans le matériau obtenue expérimentalement et loi empirique utilisée pour la modélisation.

Sel	LiCl	K ₂ CO ₃	NaCl	KCl	K ₂ CO ₄
RH	12%	43,2%	75,5%	85,1%	97,6%

Table 3.3: Solutions saturées en sels utilisées et humidité relatives associées à 20 °C.

3.3.2 Activité de l'eau

L'activité de l'eau, nécessaire pour la modélisation numérique, a été déduite des courbes d'isothermes de désorption obtenues par la méthode des solutions salines saturées. Dans un environnement où la température et l'humidité relative sont constantes, fixées à T_{air} et HR , un produit céramique cru perd de l'eau jusqu'à une masse d'équilibre. À ce point d'équilibre il n'y a plus de transferts, ni de chaleur ni de masse ($C_s = C_{air}$ et $T_s = T_{air}$), et l'activité de l'eau dans le produit a_w est égale à l'humidité relative de l'air RH .

Plusieurs solutions salines saturées ont été utilisées pour fixer l'humidité relative selon le tableau 3.3. Les échantillons de pâte sont déposés dans une boîte hermétique dans laquelle se trouve également une solution saturée en sel, comme illustré par la Fig. 3.10. La masse des échantillons est mesurée chaque jour jusqu'à ce qu'elle ne varie plus, l'équilibre est alors atteint. Enfin la masse sèche des échantillons est mesurée après un séchage de 24 h dans une étuve à 105 °C.

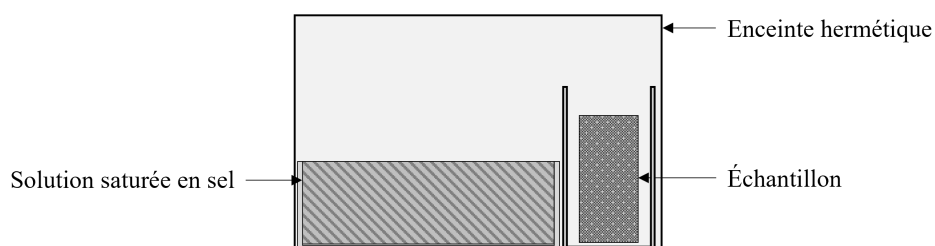
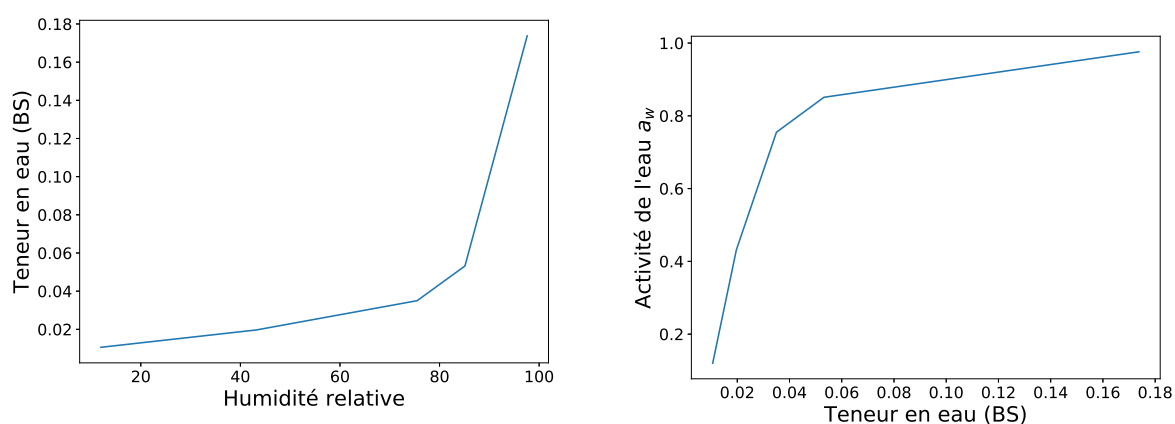


Figure 3.10: Représentation schématique du montage pour la mesure de l'activité de l'eau.



(a) Teneur en eau d'équilibre de l'échantillon en fonction de l'humidité relative de l'atmosphère de séchage. **(b)** Isotherme de désorption équivalent à la teneur en eau en fonction de l'activité de l'eau à 20°C.

Figure 3.11: Courbes obtenues suite à la mesure de l'activité de l'eau sur la pâte EZPrint3D-E

La mesure de l'activité de l'eau a été réalisée sur des échantillons de pâte extrudés au travers d'une buse d'extrusion de 1,5 mm de diamètre. La forme des échantillons ainsi obtenus permet d'atteindre le point d'équilibre rapidement en raison de la grande surface d'échange avec l'environnement. Les résultats obtenus sont tracés sur la Fig. 3.11(a) qui présente les valeurs de teneur en eau d'équilibre en fonction de l'humidité relative de l'atmosphère de séchage. À partir de ces résultats il est possible de déduire la valeur de l'activité de l'eau en fonction de la teneur en eau du matériau (Fig. 3.11(b)).

Durant le séchage, l'activité de l'eau est proche de 1 jusqu'à ce que la teneur en eau à la surface de l'échantillon diminue sous 17%. L'activité diminue alors pour atteindre 0,85 à 5% de teneur en eau, puis diminue fortement jusqu'à atteindre 0,12 à 1% de teneur en eau.

De la même manière que pour le coefficient de diffusion équivalent, l'utilisation de ces résultats dans le modèle nécessite de déterminer une loi empirique pour l'activité de l'eau à partir des résultats expérimentaux. La relation d'Oswin a été utilisée :

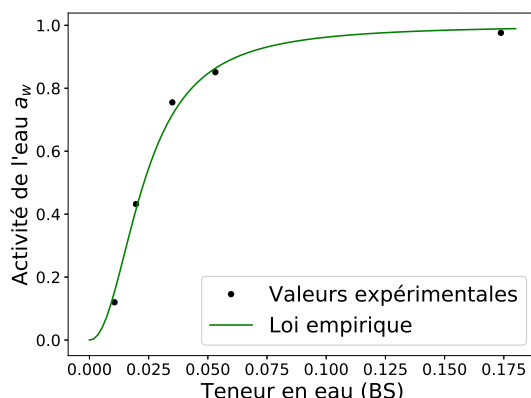


Figure 3.12: Loi empirique utilisée pour estimer l'activité de l'eau en fonction de la teneur en eau du matériau.

$$a_w = \frac{1}{1 + \left(\frac{a}{X}\right)^b} \quad (3.5)$$

où X est la teneur en eau, et a et b sont des coefficients tels que $a = 0,023$ et $b = 2,2$ [58]. Les données expérimentales et obtenues par cette relation sont présentées sur la Fig. 3.12.

3.3.3 Mesure du coefficient d'échange par convection

Le coefficient d'échange par convection h doit être mesuré afin d'être utilisé dans le modèle numérique. Pour réaliser la mesure, il est nécessaire de se placer dans les mêmes conditions de flux d'air que celles qui seront subies par le produit lors du séchage.

Le coefficient d'échange par convection a été mesuré en utilisant la loi de refroidissement de Newton pour un solide mince, i.e. avec $Bi \leq 0,1$:

$$\frac{T - T_\infty}{T_0 - T_\infty} = e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (3.6)$$

où T est la température du solide qui dépend du temps, T_0 est sa température initiale, T_∞ est la température de l'air, t est le temps, et τ est la constante de temps de refroidissement, telle que :

$$\tau = \frac{\rho C V}{h S} \quad (3.7)$$

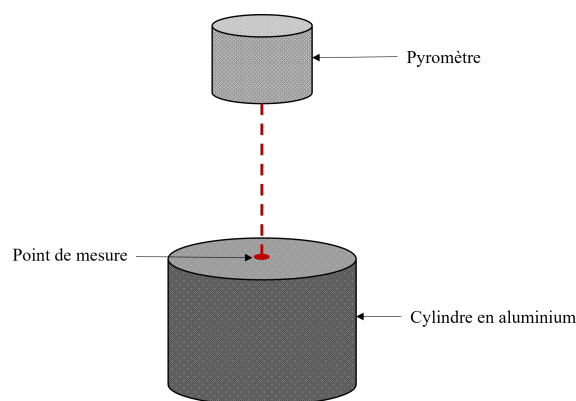


Figure 3.13: Représentation schématique du montage pour la mesure de coefficient d'échange par convection h

où S est l'aire de la surface d'échange, V le volume du solide, C sa chaleur spécifique et ρ est sa masse volumique [23].

Cette méthode a été appliquée pour mesurer h en utilisant un cylindre en aluminium ($\lambda \simeq 200 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$). Le cylindre est chauffé puis placé dans la zone où l'on souhaite déterminer le coefficient. Un pyromètre (Lumasense IMPAC IN5 Plus) est placé au-dessus du cylindre pour mesurer sa température de surface dans une petite cavité qui a été percée sur la surface supérieure et qui est recouverte de graphite. Une représentation schématique de cette expérience est présentée sur la Fig. 3.13. Ceci permet de supposer que le rayonnement est celui d'un corps noir ($\varepsilon = 1$). La température à l'intérieur du cylindre est supposée uniforme comme son nombre de Biot est inférieur à 0,1. La température est suivie pendant la durée du refroidissement, soit environ 15 minutes. Le coefficient h est déduit de la mesure de la constante de temps de refroidissement τ .

La mesure du coefficient d'échange par convection h a été réalisée dans deux environnements différents : à l'air ambiant sur l'espace de travail proche de la machine de robocasting et à l'intérieur de l'enceinte climatique. La valeur de h mesurée à l'air ambiant est de $10 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ et celle à l'intérieur de l'enceinte climatique est de $30 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$. La grande différence entre les deux valeurs de coefficient d'échange par convection est due au régime de convection forcée imposé par une ventilation dans l'enceinte climatique lors de son fonctionnement.

3.3.4 Propriétés d'entrée du modèle

La fiabilité des résultats de simulation obtenus avec le modèle repose en partie sur la qualité de ses paramètres d'entrée. Les propriétés physiques mesurées précédemment

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Masse volumique du solide	ρ_{solide}	2600	kg.m^{-3}
Conductivité thermique	λ	1,5	$\text{W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$
Constante des gaz parfaits	R	8,314	$\text{J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$
Capacité calorifique du solide	Cp_{solide}	900	$\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$
Capacité calorifique de l'air	Cp_{air}	1000	$\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$
Enthalpie de vaporisation de l'eau	$L_w(T)$	$1000 \times (2501 - 2,43(T - 273,15))$	J.kg^{-1}
Pression de vapeur saturante	$P_s(T)$	$5.11564 - \frac{1687.537}{T+230.17-273,15}$	Pa
Activité de l'eau	a_w	Eq. 3.5	
Coefficient de diffusion équivalent	D_w	Eq. 3.4	$\text{m}^2.\text{s}^{-1}$

Table 3.4: Valeurs pour les propriétés d'entrée du modèle numérique

sont très importantes pour l'obtention de résultats réalistes mais il existe plusieurs autres propriétés jouant un rôle important dans l'obtention de ces résultats. Les paramètres d'entrée du modèle sont présentés dans le tableau 3.4.

La conductivité thermique de la pâte est considérée égale à celle d'une pâte de kaolin, mesurée dans des travaux antérieurs [39]. Cette approximation est faite car la pâte est composée en majorité de kaolin et que la mesure de la conductivité thermique nécessite une préparation d'échantillon longue. La capacité calorifique du solide a été calculée en utilisant la loi des mélanges pour tenir compte de la fraction massique de groupements hydroxyles, dont la contribution a été estimée par Ben Lakhel [59].

3.4 Conclusion

Le modèle numérique a été mis en oeuvre pour réaliser une étude de l'influence des conditions extérieures et du coefficient de diffusion équivalent sur le séchage d'un produit céramique. Les résultats ont montré que la vitesse de séchage augmente linéairement avec le coefficient d'échange par convection h et décroît avec l'augmentation de l'humidité relative de l'air HR . Le coefficient de diffusion équivalent peut varier de manière importante durant le séchage, et le modèle a montré comment la distribution de teneur en eau est sensible à ce paramètre.

La pâte utilisée est une pâte de porcelaine commercialisée par Imerys sous la référence EZPrint3D-E. Son étude granulométrique a montré qu'elle est composée de plaquettes de diamètre médian $2.59 \mu\text{m}$. Une analyse thermo-gravimétrique a permis d'estimer sa teneur massique en kaolinite à environ 50%.

Afin de s'assurer que les simulations du séchage soient réalistes, il a été nécessaire d'estimer des lois empiriques pour la valeur du coefficient de diffusion équivalent et de l'activité de l'eau. Après avoir présenté les méthodes utilisées, ces deux paramètres ont été mesurés sur la pâte de porcelaine utilisée lors de cette thèse. Le coefficient de diffusion équivalent présente une variation avec la teneur en eau en deux étapes, dont une hypothèse serait, selon la littérature, la présence de deux populations de taille de pores. Enfin, les valeurs des propriétés d'entrée du modèle, nécessaires à la modélisation de la pâte, ont été présentées.

4

Caractérisation des retraits de séchage dans le procédé de robocasting

Sommaire

4.1	Méthodes de mesure des variations dimensionnelles	85
4.1.1	Méthodes pour la mesure du retrait de séchage d'une pâte céramique	85
4.1.2	Méthodes pour la mesure du retrait de produits obtenus par robocasting	87
4.2	Étude des retraits de séchage dans le procédé de robocasting	95
4.2.1	Mesure du retrait sur la pâte de porcelaine	95
4.2.2	Effet de la mise en forme de la pâte	96
4.2.3	Influence des paramètres d'extrusion	103
4.2.4	Influence de l'empilement des cordons	105
4.3	Conclusion	110

CE chapitre examine le comportement de produits céramiques, réalisés en utilisant la pâte de porcelaine, lors du séchage avec une attention particulière concernant le retrait. Des méthodes déjà existantes pour la mesure du retrait d'une pâte céramique seront présentées, avant de détailler les méthodes qui ont été développées spécifiquement pour les mesures sur des produits obtenus par robocasting. Le retrait de séchage de produits imprimés sera ensuite étudié dans différentes configurations afin d'évaluer l'influence du procédé de mise en forme sur le retrait.

4.1 Méthodes de mesure des variations dimensionnelles

4.1.1 Méthodes pour la mesure du retrait de séchage d'une pâte céramique

Cette partie présente deux méthodes de mesure du retrait sur une pâte céramique. La première est une méthode couramment utilisée pour l'obtention de courbes de Bigot, et la seconde, plus récente, est très utile pour repérer une éventuelle anisotropie de retrait selon la morphologie des grains de la pâte et la méthode de mise en forme.

Mesure du retrait linéaire d'une pâte

Cette méthode consiste à utiliser un capteur pour mesurer la variation de hauteur d'un échantillon durant son séchage, qui peut être couplé à un suivi de la masse afin de tracer la courbe de Bigot.

Il existe plusieurs capteurs de mesure permettant de suivre la hauteur d'un échantillon pendant son séchage. Dans notre cas, nous utilisons un capteur LVDT (Linear Variable

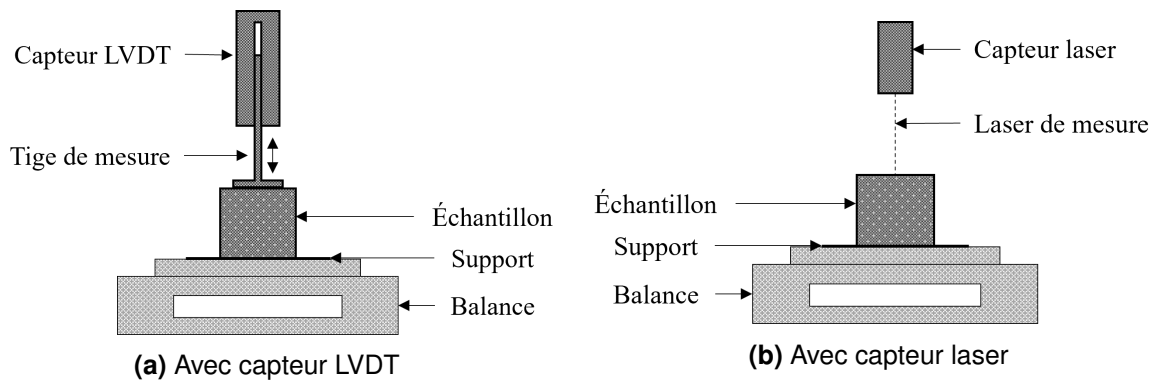


Figure 4.1: Représentation schématique du montage pour la mesure de retrait linéaire

Differential Transformer) ou un capteur par triangulation laser. La Fig. 4.1 présente schématiquement cette méthode de mesure pour les deux capteurs. Dans les deux configurations le capteur est placé directement au dessus de l'échantillon et la mesure est faite au centre de la surface, ce qui permet de s'affranchir des effets de bord. L'utilisation d'un capteur LVDT est plus délicate car les frottements de la tige du capteur dans son fourreau peuvent perturber la valeur de la masse. Ce capteur présente néanmoins l'avantage de pouvoir être utilisé à des températures et humidité relatives plus élevées en comparaison au capteur laser.

Cette méthode de mesure du retrait permet d'obtenir des valeurs dans une seule direction. S'il est possible de répéter la mesure pour obtenir le retrait dans plusieurs directions, cela est impossible à réaliser sur le même échantillon.

Mesure du retrait par suivi de marqueurs

La méthode de mise en forme du produit peut influencer son retrait de séchage dans différentes directions, un phénomène qu'une simple mesure de retrait linéaire ne permet pas d'observer directement. Une méthode a été développée par Oummadi et al. pour mesurer le retrait dans deux directions simultanément, permettant d'évaluer une éventuelle anisotropie du retrait de séchage sans répétition de mesure [60].

L'approche consiste à suivre tout au long du séchage, à l'aide d'une caméra, la position de marqueurs déposés sur la surface de l'échantillon. La Fig. 4.2 présente schématiquement le principe de fonctionnement. Neuf marqueurs sont déposés sur la surface de l'échantillon, ce qui permet à posteriori d'évaluer le retrait de séchage dans plusieurs directions et à différents niveaux de la pièce, permettant ainsi d'obtenir davantage d'information sur les retraits de séchage.

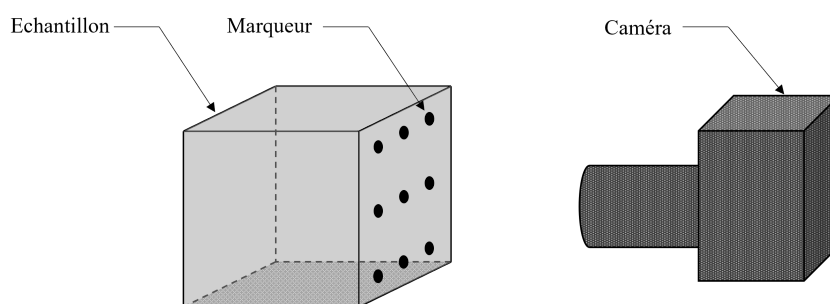


Figure 4.2: Représentation schématique de l'échantillon pour le suivi de marqueur

Une caméra (IDS UI-1490SE) enregistre des images de l'échantillon à intervalle de temps régulier tout au long du séchage. Les images sont ensuite traitées par un algorithme d'analyse d'image, écrit en langage Python et basé sur la librairie OpenCV, dont l'objectif est d'identifier la position des marqueurs sur chacune des images. À partir de ces positions il est possible d'obtenir un suivi du retrait subi par l'échantillon entre n'importe lesquels des marqueurs. Ainsi il est possible de suivre le retrait dans deux directions avec un seul échantillon. La méthode pourrait bien sûr être étendue pour la mesure simultanée en trois dimensions avec une caméra supplémentaire.

4.1.2 Méthodes pour la mesure du retrait de produits obtenus par robocasting

La mesure du retrait de séchage sur les produits obtenus par robocasting est difficile à réaliser avec les méthodes présentées précédemment, particulièrement pour l'étude du retrait de cordons de pâte céramique qui ont un diamètre de l'ordre du millimètre. C'est pour cela que nous avons développé des méthodes de mesure optiques, non-destructives, du retrait de séchage et qui sont adaptées aux différentes échelles : depuis le cordon jusqu'aux produits.

Mesure du retrait d'un cordon

La méthode de mesure présentée ici a pour objectif l'obtention d'un suivi du retrait de séchage d'un cordon de pâte céramique dans deux directions : radiale et longitudinale. En raison du faible diamètre des cordons à observer (1 à 1,5 mm de diamètre), l'utilisation d'un capteur ou de marqueurs pour suivre le retrait est très difficile. Un suivi optique a donc été réalisé à l'aide de caméras à haute résolution.

La Fig. 4.3 présente schématiquement le montage expérimental pour le suivi du retrait de séchage sur un cordon. Les caméras prennent des images du cordon à intervalles

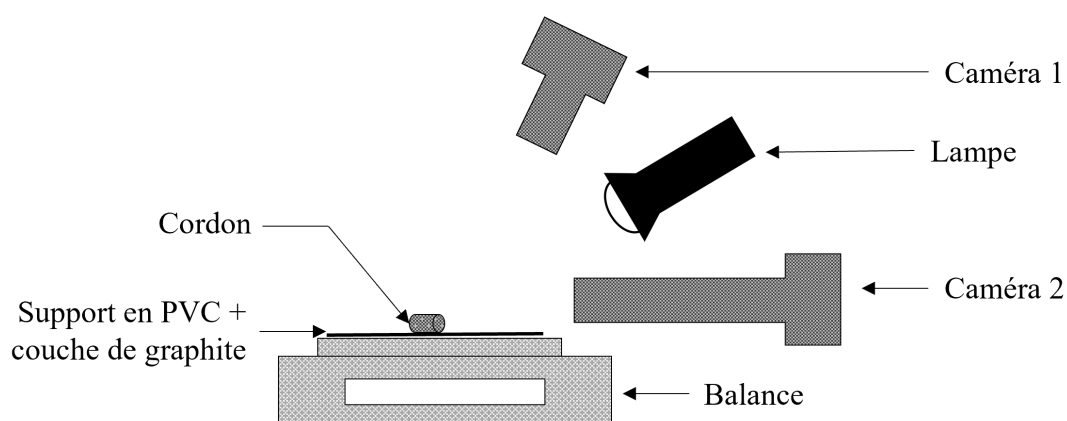


Figure 4.3: Représentation schématique du montage expérimental pour le suivi du retrait de séchage sur un cordon.

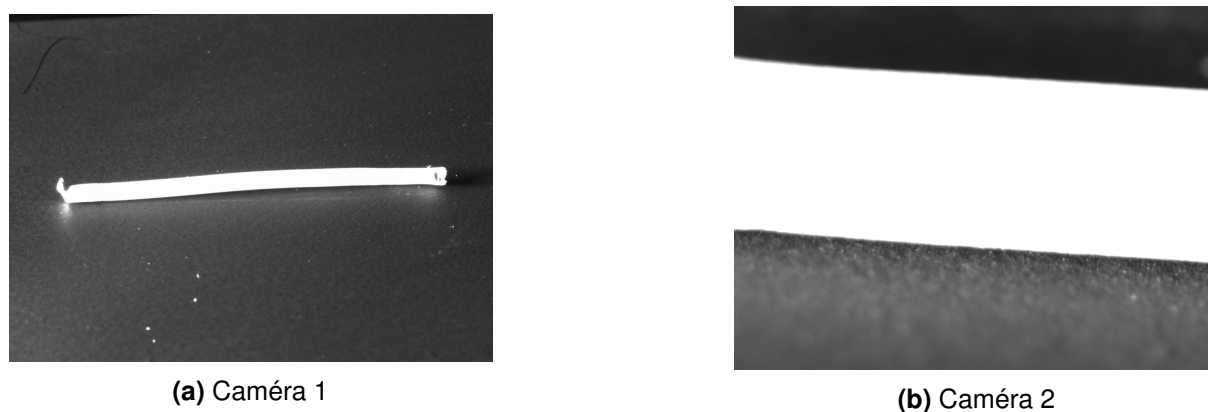


Figure 4.4: Images de cordons obtenues avec les caméras pour le suivi du retrait de séchage.

de temps régulier pendant toute la durée du séchage. Les images prises par la caméra 1 (IDS UI-1490SE), d'une résolution de 3840x2748 px, sont utilisées pour mesurer la longueur du cordon, et les images prises par la caméra 2 (IDS UI-1480SE + OPTEM Fusion 12.5:1), d'une résolution de 2560x1920 px sont utilisées pour mesurer le diamètre du cordon. Les Fig. 4.4(a) et Fig. 4.4(b) montrent des exemples d'images obtenues avec les caméras 1 et 2. Le cordon est déposé sur un support en PVC qui a été préalablement recouvert d'une couche de graphite par pulvérisation. Le graphite présente deux avantages : sa couleur noir mat permet l'obtention d'un très bon contraste entre le cordon et le support (Fig. 4.4) ce qui est important lors de l'analyse des images, et c'est aussi un lubrifiant solide qui limite l'adhésion du cordon sur le support permettant au cordon de prendre son retrait sans adhérer au support. Une lampe est utilisée pour éclairer le cordon et accentuer le contraste entre celui-ci et le support.

À la fin du séchage deux séries d'images sont donc obtenues : une pour chacune des caméras. Un script développé en langage Python est alors utilisé pour obtenir les

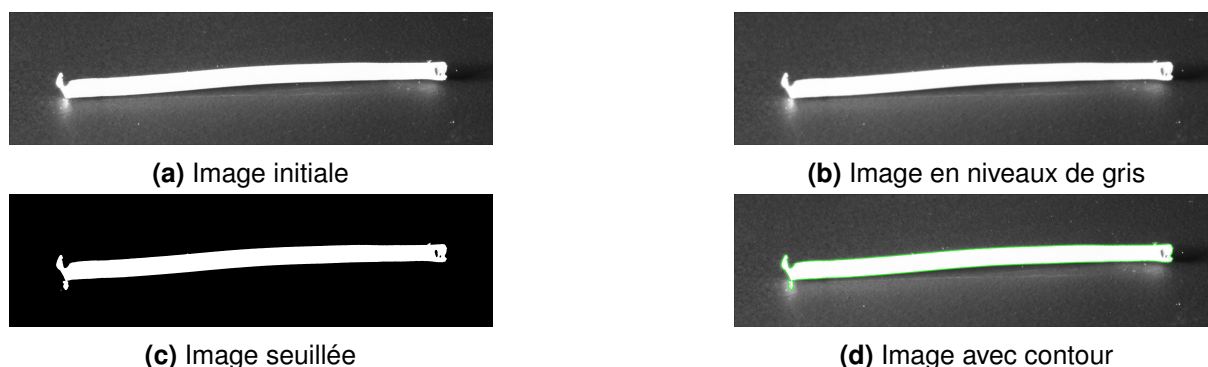


Figure 4.5: Étapes de pré-traitement d'une image de cordon : exemple d'une image pour la mesure longitudinale.

dimensions en pixels du cordon au cours du séchage à partir de ces images. Pour cela chacune des images est pré-traitée selon un protocole spécifique avant d'être analysée. Si le protocole de pré-traitement est identique pour les deux séries d'images, l'étape d'analyse est différente pour la mesure longitudinale et pour la mesure radiale.

Lors du pré-traitement les images sont tronquées, passées en niveaux de gris, floutées puis seuillées avant qu'une analyse de contours soit réalisée. Ces étapes sont illustrées sur la Fig. 4.5. La transformation d'une image en couleur en une image en niveaux de gris est réalisée afin de pouvoir seuiller l'image, c'est à dire affecter à chaque pixel la valeur 0 (noir) ou 1 (blanc) en comparant leur valeur à une valeur seuil. Le floutage permet d'améliorer la détection des contours afin d'obtenir de meilleurs résultats de mesure. À l'issue de l'analyse de contours, seul le plus grand des contours détectés est conservé car il correspond au contour du cordon. Toutes les mesures sont réalisées en nombre de pixels, sans conversion en unité de longueurs.

La longueur du cordon est alors obtenue en plaçant un rectangle avec la plus petite aire possible sur le contour, comme illustré sur la Fig. 4.6, pour ensuite en mesurer la longueur.

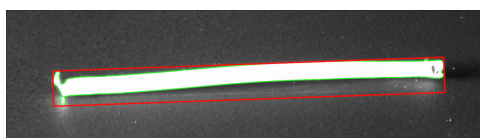


Figure 4.6: Image d'un cordon traitée pour la mesure de sa longueur.

La mesure du diamètre du cordon est plus complexe. Afin d'obtenir une valeur fiable, cinq mesures réparties sur la partie visible du cordon sont réalisées. Pour cela le script

place cinq marqueurs virtuels sur la partie supérieure du contour du cordon, recherche pour chacun d'eux le point le plus proche sur la partie inférieure du contour, puis calcule la distance entre les deux points, comme illustré sur la Fig. 4.7. La valeur pour le diamètre du cordon est obtenue en calculant la moyenne des cinq mesures. Cette valeur de diamètre moyennée spatialement permet de réduire significativement le bruit de mesure.

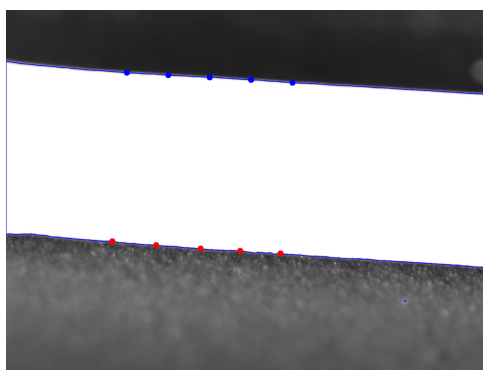


Figure 4.7: Image de cordon traitée pour la mesure automatique du diamètre par des marqueurs virtuels.

Une fois les mesures de la longueur et du diamètre du cordon réalisées pour toute la durée du séchage il est possible de calculer le retrait longitudinal et le retrait radial. Le suivi de la masse permet aussi de tracer une courbe de Bigot dans chaque direction d'observation.

Mesure du retrait d'un empilement de cordons

Cette méthode permet de mesurer le retrait de séchage de plusieurs cordons dans deux directions : radiale et longitudinale. Elle peut permettre de mettre en évidence les interactions entre les cordons durant le séchage. Dû à la faible hauteur d'empilement des couches ainsi qu'à la nature locale de la mesure une méthode optique est particulièrement adaptée.

La Fig. 4.8 présente schématiquement le principe de fonctionnement de la méthode d'acquisition des images. Une caméra (IDS UI-1480SE + OPTEM Fusion 12.5:1) est placée face à l'échantillon et prend des images à intervalle régulier pendant toute la durée du séchage. Une balance effectue le suivi de la masse de l'échantillon simultanément.

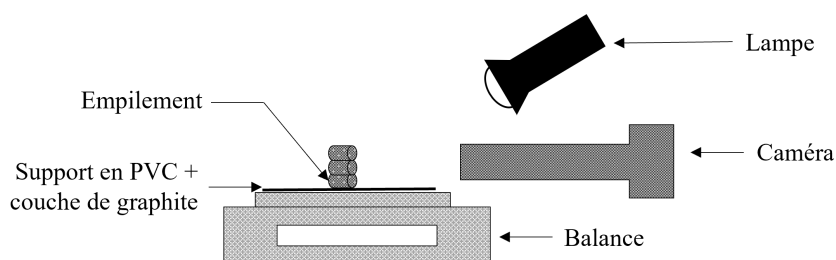


Figure 4.8: Représentation schématique du montage expérimental pour la mesure du retrait sur un empilement de cordons

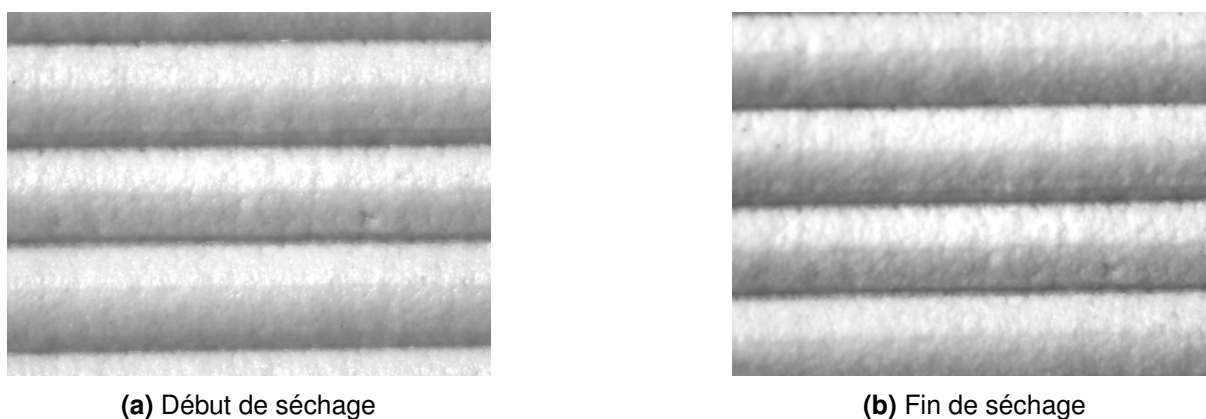


Figure 4.9: Images d'un empilement de cordons obtenues avec la caméra pour la mesure du retrait radial.

À l'issue du séchage une série d'images comme celles présentées sur la Fig. 4.9 est obtenue. Le diamètre de chacun des cordons visible est mesuré à l'aide du logiciel ImageJ. Pour cela une ligne est tracée entre le haut et le bas du cordon et sa longueur en nombre de pixels est enregistrée. Chaque mesure est répétée cinq fois de façon à réduire l'erreur de mesure liée à l'utilisateur. Le retrait est calculé en comparant la première et la dernière image de la série.

La mesure du retrait longitudinal a été réalisée en effectuant des indentations dans chacun des cordons avec une aiguille, comme présenté sur la Fig. 4.10, puis en mesurant la distance en nombre de pixels entre les indentations de la même façon que pour la mesure du diamètre.

Mesure du retrait sur un produit

La maîtrise des retraits de séchage de produits issus de l'impression 3D par robocasting nécessite dans un premier temps de pouvoir les quantifier. Ces produits étant généralement uniques la méthode de mesure du retrait se doit d'être non-destructive et capable

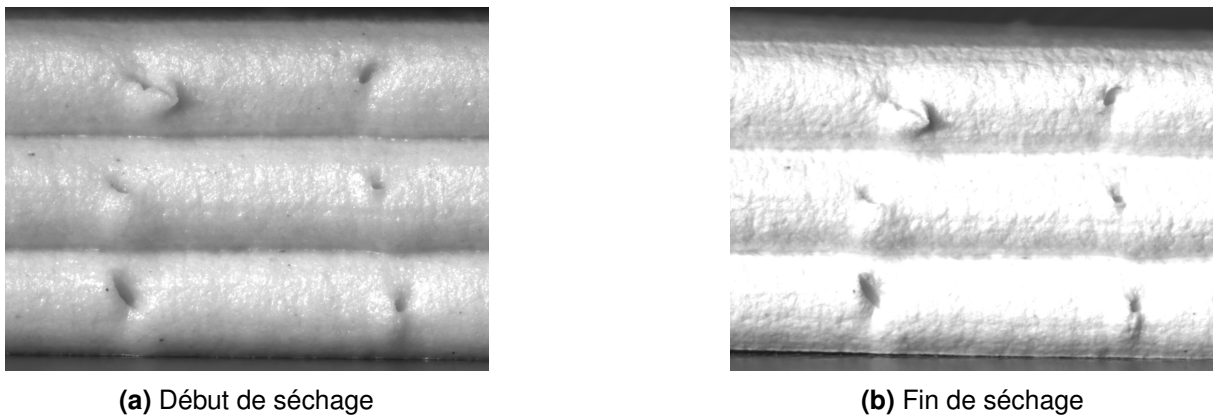


Figure 4.10: Images d'un empilement de cordons obtenues avec la caméra pour la mesure du retrait longitudinal

d'être appliquée à différentes géométries de produits. Idéalement cette méthode devrait pouvoir assurer un suivi du retrait durant toute la durée du séchage. De manière similaire à ce qui a été présenté précédemment, la méthode développée est basée sur l'utilisation d'une caméra et d'un script en langage Python pour le traitement des images. La mesure du retrait est basée sur une technique de détection automatique des cordons, qui s'appuie sur l'état de surface du produit imprimé et qui permet de suivre l'évolution de la taille des cordons au cours du temps.

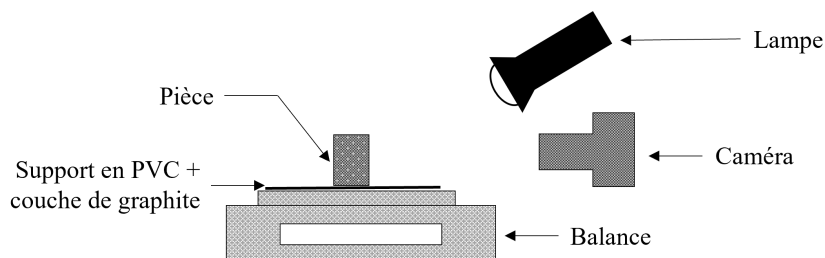


Figure 4.11: Représentation schématique du montage expérimental pour le suivi du retrait sur une pièce

Le principe de l'acquisition d'images est présenté sur la Fig. 4.11. Une caméra (IDS UI-1490SE) prend des images du produit avec un intervalle régulier durant le séchage et une lampe est utilisée pour éclairer la pièce et augmenter la visibilité des interfaces entre les cordons. La Fig. 4.12 montre un exemple d'une image prise sur un produit en cours de séchage. Une fois l'image acquise elle est analysée par un script python pour déduire la hauteur des cordons.

L'analyse des images se divise en deux étapes : une étape de pré-traitement et une étape de détection des interfaces entre les cordons. L'étape de pré-traitement de l'image

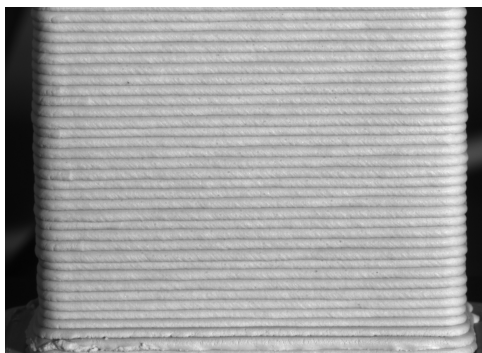


Figure 4.12: Exemple d'image d'un produit utilisée pour la détection automatique de cordons

est composée de plusieurs étapes successives :

- **Rotation** : l'image est tournée de façon à ce que les cordons soient parfaitement horizontaux
- **Sélection de la zone d'étude** : l'utilisateur sélectionne la zone de la pièce à étudier. Cette zone sera gardée en mémoire pour toutes les images suivantes.
- **Passage en niveaux de gris** : l'image en couleur est transformée en une image en niveaux de gris en vue de la détection de bords
- **Floutage** : l'image est floutée pour diminuer le bruit et améliorer la qualité du résultat de l'étape de détection de bords
- **Détection de bords** : l'algorithme de détection de bords de Canny est appliqué à l'image [61]. Il est composé de plusieurs étapes et permet d'extraire les variations brutales de gradient d'intensité de pixel dans une image.

La Fig. 4.13 présente un exemple des images qui peuvent être obtenues durant le pré-traitement. L'image obtenues après le pré-traitement met en évidence les interfaces entre les cordons, qui apparaissent en blanc sur la Fig. 4.13(d). Cette image est celle utilisée pour déterminer automatiquement la position des interfaces entre les cordons et calculer le diamètre moyen des cordons.

L'algorithme utilisé pour déterminer la position des interfaces et le diamètre moyen des cordons dans la zone d'étude est décrit succinctement par l'Algorithme 4. La méthode peut être résumée à la construction d'un histogramme de la densité de pixels blancs sur la hauteur de la zone étudiée et au moyennage de la hauteur des zones dense en pixels blancs pour obtenir la position des interfaces (Fig. 4.14). Le diamètre des cordons est obtenu en calculant la distance entre les interfaces successives. L'analyse de l'ensemble des images obtenues après séchage permet d'obtenir un suivi du retrait

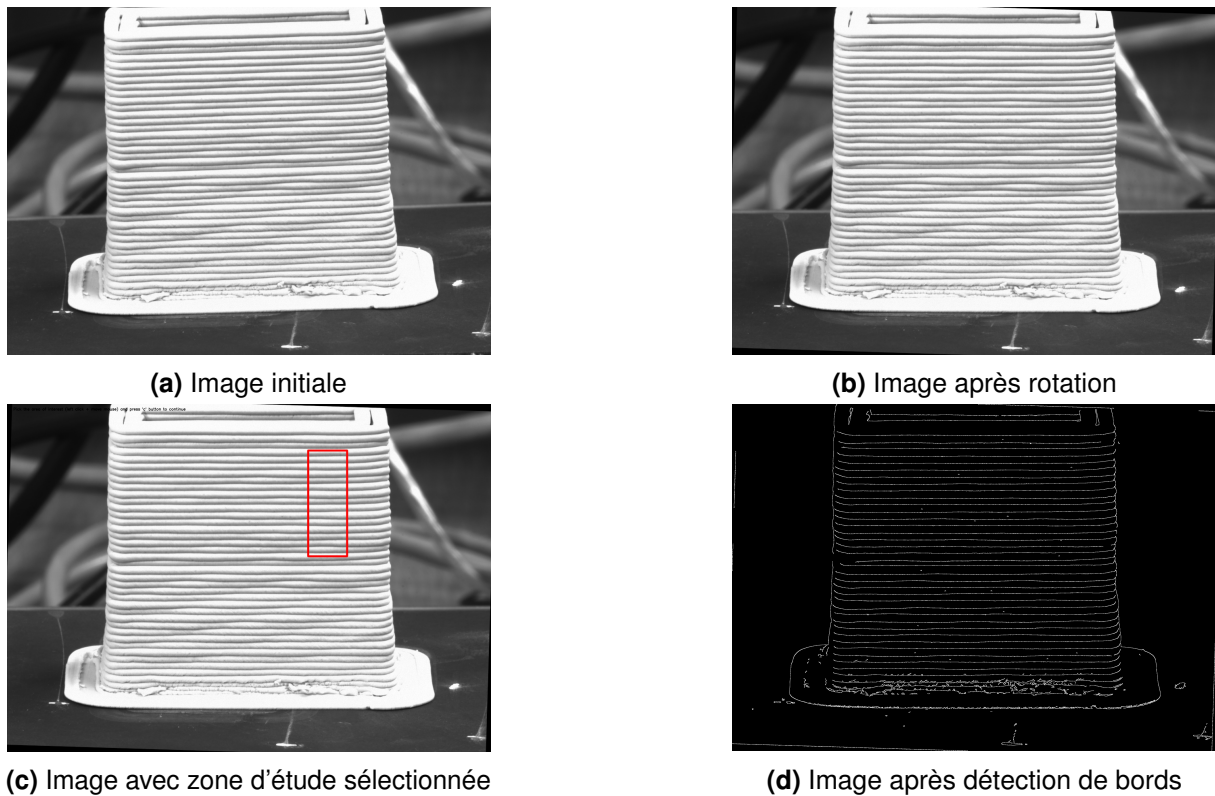


Figure 4.13: Étapes de pré-traitement d'une image d'un produit.

dans la zone souhaitée.

Algorithm 4 Calcul du diamètre moyen des cordons dans la zone d'étude

- 1: **for each** ligne de pixels dans la zone d'étude **do**
 - 2: calcul du nombre de pixels blanc
 - 3: regroupement des lignes adjacentes contenant un grand nombre de pixels blancs
 - 4: calcul de la position moyenne des groupes pour obtenir la position des interfaces
 - 5: **for each** interface **do**
 - 6: calcul de la distance avec l'interface suivante
 - 7: calcul du diamètre moyen des cordons dans la zone d'étude à partir des distances entre les interfaces
-

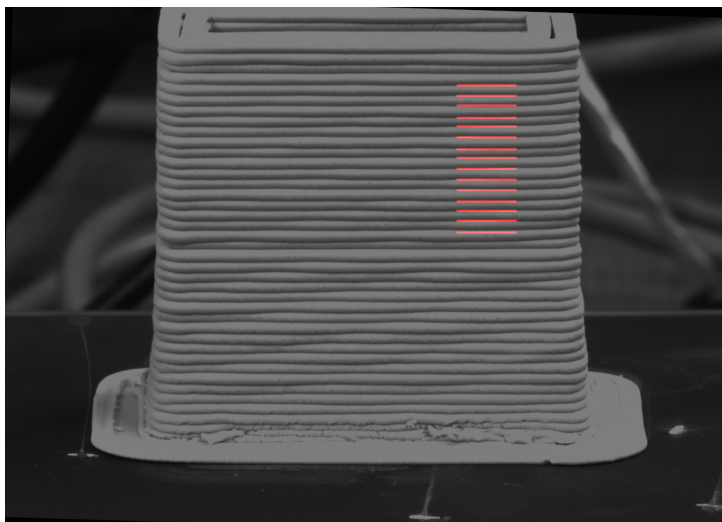


Figure 4.14: Image d'un produit après pré-traitement et analyse par l'Algorithme 4

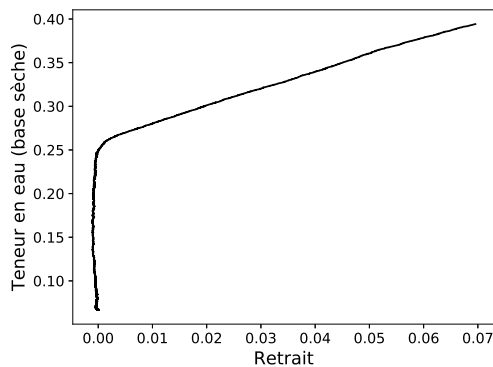
4.2 Étude des retraits de séchage dans le procédé de robocasting

Une mesure du retrait a dans un premier été réalisée sur un échantillon prélevé dans la pâte, c'est-à-dire qui n'a pas été mis en forme par robocasting. Ensuite les méthodes présentées ont été mises en oeuvre pour étudier le retrait pour des échantillons de différentes tailles mis en forme par robocasting : un cordon et des empilements de cordons. Différents échantillons ont été réalisés de manière à isoler les phénomènes qui peuvent influencer le retrait de séchage.

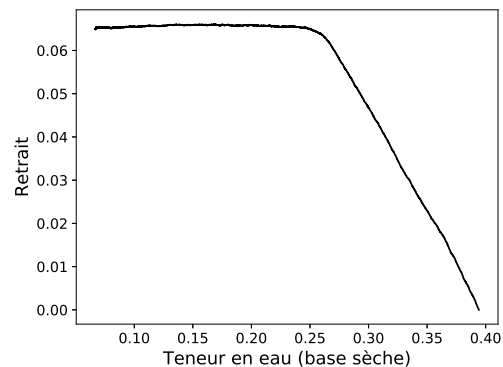
4.2.1 Mesure du retrait sur la pâte de porcelaine

Le retrait de séchage de la pâte de porcelaine présentée dans le chapitre 3 a été mesuré dans le but d'obtenir un point de comparaison avec les produits obtenus par robocasting. La mesure a été réalisée sur un cube de $20 \times 20 \times 20 \text{ mm}^3$ à l'aide de la méthode de mesure de retrait linéaire avec un capteur laser.

La Fig. 4.15(a) présente la courbe de Bigot obtenue. La pâte présente un retrait, calculé par rapport à la longueur finale selon l'Eq. 1.15, de 7% pour une teneur en eau initiale de 39,8%. Une information importante présente sur la courbe est que la fin du retrait se situe à environ 25% de teneur en eau.



(a) Courbe de Bigot, calculée par rapport à la longueur finale.



(b) Courbe de retrait, calculée par rapport à la longueur initiale.

Figure 4.15: Mesure du retrait de la pâte de porcelaine en fonction de sa teneur en eau.

La courbe du retrait calculé par rapport à la longueur initiale, selon l'Eq. 2.25, est présentée sur la Fig. 4.15(b). Le retrait total ainsi obtenu (6,5%) est inférieur à celui calculé par rapport à la longueur finale.

4.2.2 Effet de la mise en forme de la pâte

Lors de son passage au travers de la filière de la buse d'extrusion, un gradient de vitesse peut apparaître au sein de la pâte. Les plaquettes qui chevauchent ce gradient de vitesse peuvent alors s'orienter dans le sens de l'extrusion. De plus, à la sortie de la buse la pâte est écrasée sur la couche inférieure (ou le support d'impression pour la première couche) ce qui ajoute de nouvelles contraintes pouvant modifier l'orientation des grains de la pâte. Afin de mieux comprendre ces phénomènes, deux études ont été menées : une première pour déterminer l'effet de l'extrusion et une seconde pour observer un éventuel effet de l'écrasement de la pâte après sa sortie de la buse.

Étude de l'effet de l'extrusion sur le retrait de la pâte

L'échantillon utilisé pour cette étude est un cordon extrudé librement puis déposé sur le support à l'aide d'une spatule. Cette manière de procéder permet de s'affranchir des contraintes liées à l'écrasement du cordon sur les couches inférieures. La Fig. 4.16 présente une image d'un cordon utilisé pour cette étude.

Ce cordon a été séché à température ambiante et ses dimensions ainsi que sa masse ont été suivies à l'aide de la méthode présentée précédemment. Ce suivi a permis de

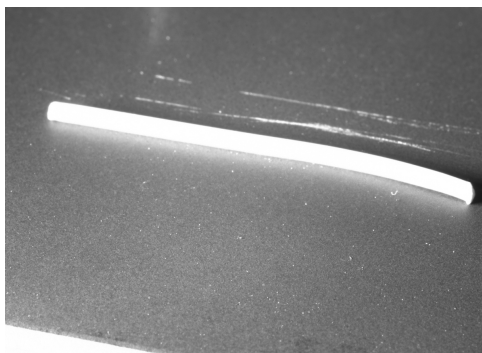


Figure 4.16: Image du cordon utilisé pour l'étude de l'effet de l'extrusion sur le retrait de la pâte

tracer les variations dimensionnelles du cordon dans les directions radiale et longitudinale qui sont présentées sur la Fig. 4.17. Le retrait de séchage est ici calculé par rapport à la longueur initiale comme défini par l'équation 2.25.

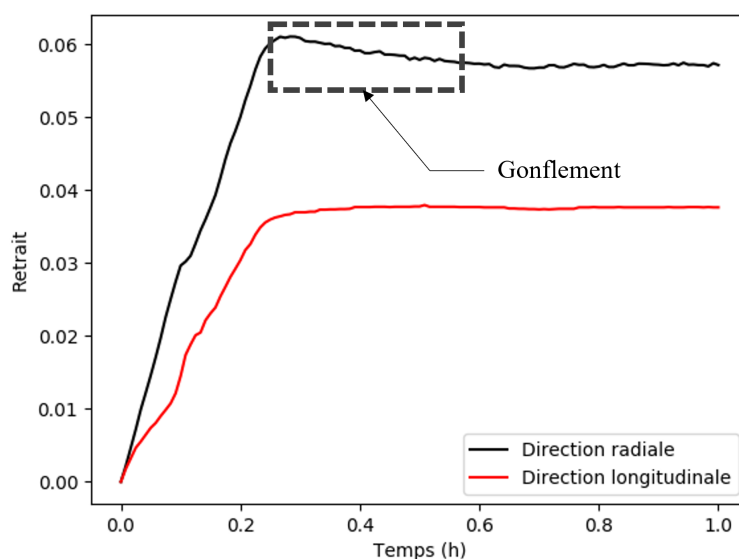


Figure 4.17: Retrait dans les directions radiale et longitudinale du cordon en fonction du temps

La Fig. 4.17 présente deux phénomènes intéressants. Tout d'abord, une différence de retrait total est observée entre les deux directions de mesure avec un retrait de 3,8% dans la direction longitudinale contre 5,7% dans la direction radiale. Une hypothèse a été proposée pour expliquer ce phénomène : cette différence serait due à une orientation préférentielle des plaquettes de kaolinite présentes dans la pâte sous l'effet du gradient de vitesse dans la filière de la buse d'extrusion. En effet si les plaquettes sont orientées dans la direction de l'extrusion, le nombre d'interfaces liquide/solide par

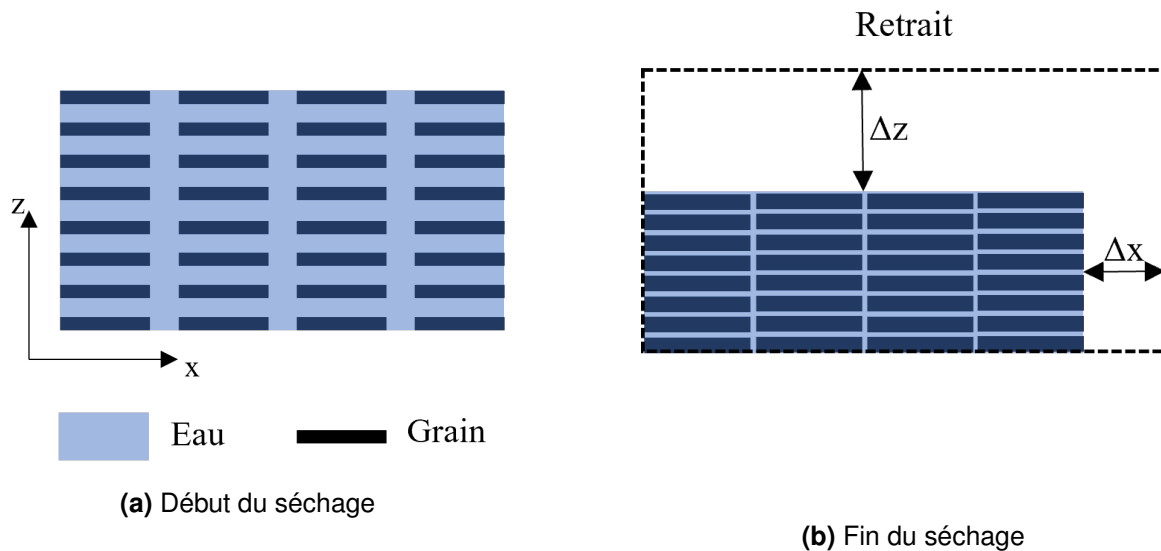


Figure 4.18: Coupe schématique d'un cordon dans la direction longitudinale (axe x) montrant la distribution et l'orientation des grains durant le séchage

unité de longueur sera plus important dans la direction radiale que dans la direction longitudinale comme illustré sur la Fig. 4.18. Lorsque l'eau présente dans le matériau est éliminée, les grains se rapprochent et le retrait est d'autant plus important dans la direction présentant davantage d'interfaces liquide/solide.

Une observation au microscope électronique à balayage a été réalisée sur des cordons de pâte de manière à apprécier l'orientation des grains dans la pâte à l'issue de l'extrusion. Deux images sont présentées : une première où la surface d'un cordon observée est perpendiculaire à la direction de l'extrusion (Fig. 4.19(a)) et une seconde sur la surface du cordon (Fig. 4.19(b)), i.e. que la surface observée est parallèle à la direction de l'extrusion. La section du cordon révèle une orientation générale des plaquettes dans le sens de l'extrusion, les parties visible des plaquettes étant majoritairement leurs arrêtes. L'observation de la surface du cordon montre elle aussi une orientation générale des plaquettes de kaolinite dans le sens de l'extrusion, puisque uniquement les surfaces basales des plaquettes sont visibles. Des observations similaires ont été obtenues par Feilden et al. sur des cordons composés à 70% kaolinite sous forme de plaquettes [49].

Un second phénomène peut être observé sur la Fig. 4.17 : un léger gonflement dans la direction radiale après le retrait, qui n'est pas présent dans la direction longitudinale. L'hypothèse émise pour expliquer la cause de ce gonflement est en lien avec les contraintes internes générées par les forces capillaires. En effet, lorsque peu d'eau reste dans le matériau des ponts liquides se forment entre les grains et les forces résultantes des ménisques ainsi créés rapprochent les grains entre eux [62]. Lorsque le séchage

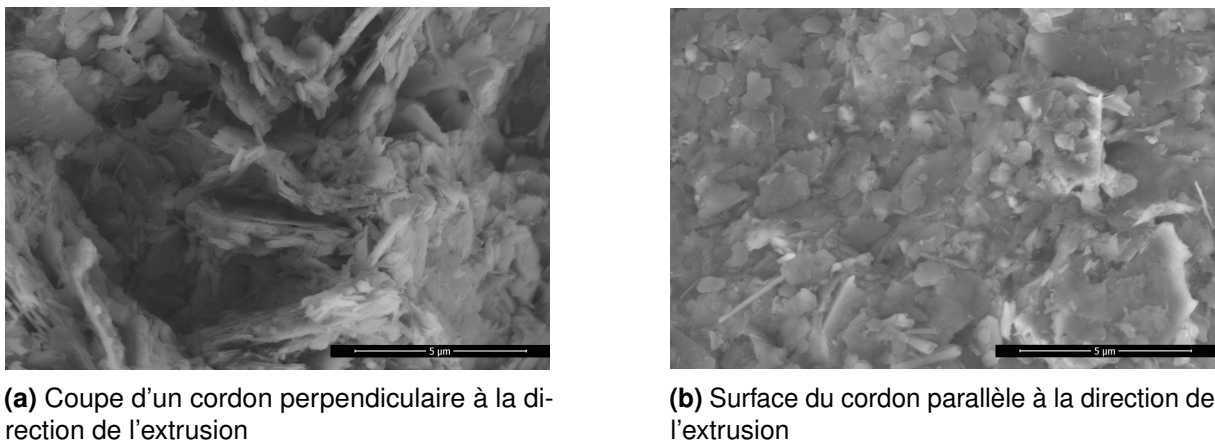


Figure 4.19: Images MEB d'un cordon de pâte de porcelaine EZPrint3D-E

est presque fini, ces ponts disparaissent et les contraintes internes sont alors relâchées permettant aux grains de se réorganiser et provoquant un léger gonflement du produit. La Fig. 4.20 présente schématiquement les forces exercées sur les grains par les ponts liquides. La présence de ce gonflement uniquement dans la direction radiale peut être due à l'orientation des plaquettes de kaolinite dans la direction d'extrusion. Il est aussi possible que les forces de frottement entre le cordon et le support inhibent ce phénomène dans la direction longitudinale.

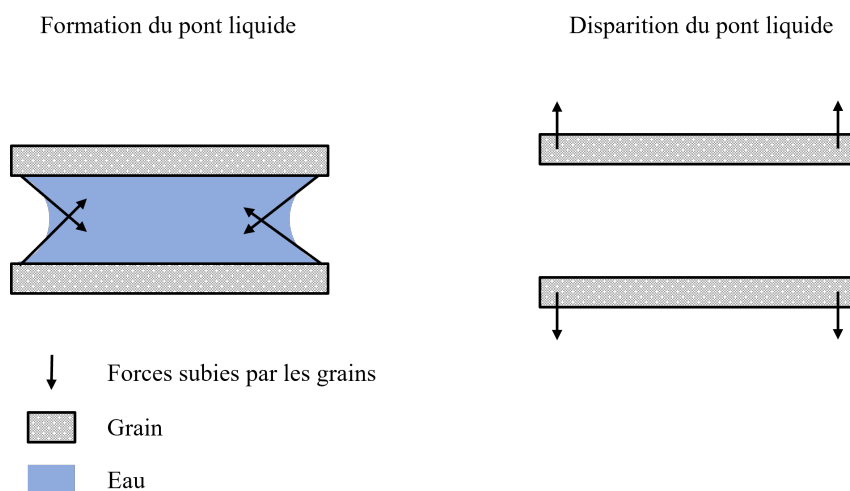
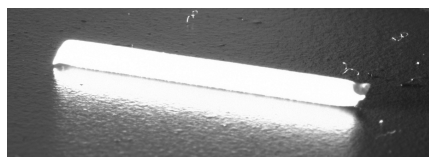
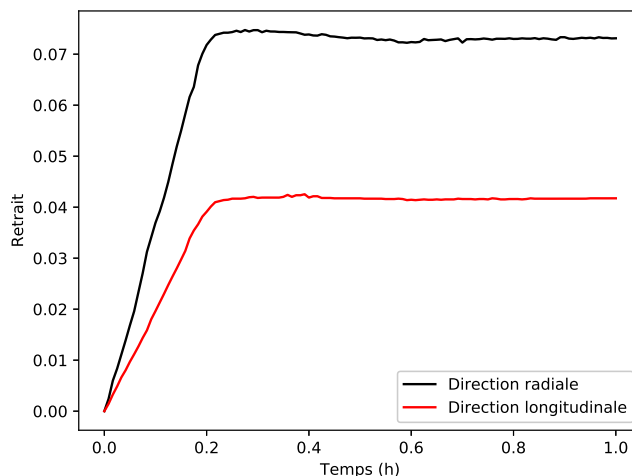


Figure 4.20: Représentation schématique d'un pont liquide et des forces exercées sur les grains

Les deux phénomènes, anisotropie de retrait et gonflement dans la direction radiale, pourraient être influencés par l'interaction entre le cordon et son support en plus de l'orientation des plaquettes de kaolinite dans le sens de l'extrusion. Afin de s'affranchir de cette interaction et d'isoler la contribution de l'orientation des grains



(a) Image d'un cordon déposé sur un film d'huile



(b) Retrait dans les directions radiale et longitudinale du cordon déposé sur de l'huile en fonction du temps

Figure 4.21: Résultats de l'expérience du séchage du cordon déposé sur de l'huile

sur ces phénomènes, un suivi du retrait d'un cordon déposé sur de l'huile a été réalisé. Une fine couche d'huile est donc déposée sur le support avant d'y déposer le cordon, comme peut cela peut l'être observé sur la Fig. 4.21(a). L'huile permet de lubrifier le support et de supprimer les forces de frottement avec le cordon.

Le cordon présente une anisotropie du retrait identique à celle du cordon déposé sur un support sans huile et un gonflement du cordon à la fin du retrait peut également être observé dans la direction radiale sur la Fig. 4.21(b). Contrairement au cordon déposé directement sur le support, ce cordon peut sembler présenter un très léger gonflement suite au retrait dans la direction longitudinale. Les forces de frottement entre le cordon et le support ont donc tendance à inhiber ce phénomène. Le cordon déposé sur l'huile présente également un retrait plus important dans les directions longitudinales (plus de 4% avec huile contre moins de 4% sans) et dans la direction radiale (plus de 7% avec huile contre moins de 6% sans), ce qui montre que l'adhésion au support semble impacter le retrait total et volumique du cordon.

Étude de l'effet de l'écrasement de la pâte après la sortie de la buse d'extrusion

Lors de l'impression d'un produit par robocasting, le cordon extrudé est écrasé sur la couche précédente pour favoriser l'adhésion entre les couches. Afin d'étudier les conséquences de cet écrasement sur le retrait du cordon, un cordon est extrudé directement sur le support d'observation en PVC recouvert de graphite comme s'il s'agissait

de la première couche de l'impression d'un produit classique, comme présenté sur la Fig. 4.22.

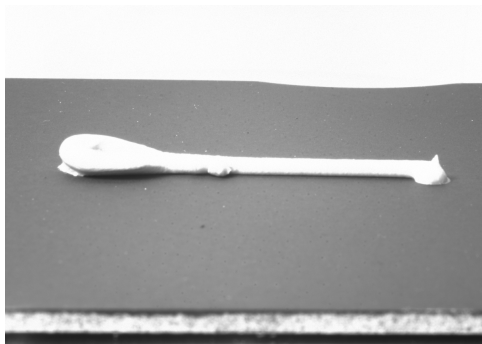


Figure 4.22: Image du cordon utilisé pour l'étude de l'effet de l'écrasement sur le retrait de la pâte

Le cordon a été séché à température ambiante et ses dimensions ainsi que sa masse ont été suivies. Le suivi des variations dimensionnelles permet ainsi de tracer le retrait de séchage du cordon dans la direction radiale et la direction longitudinale, présenté sur la Fig. 4.23.

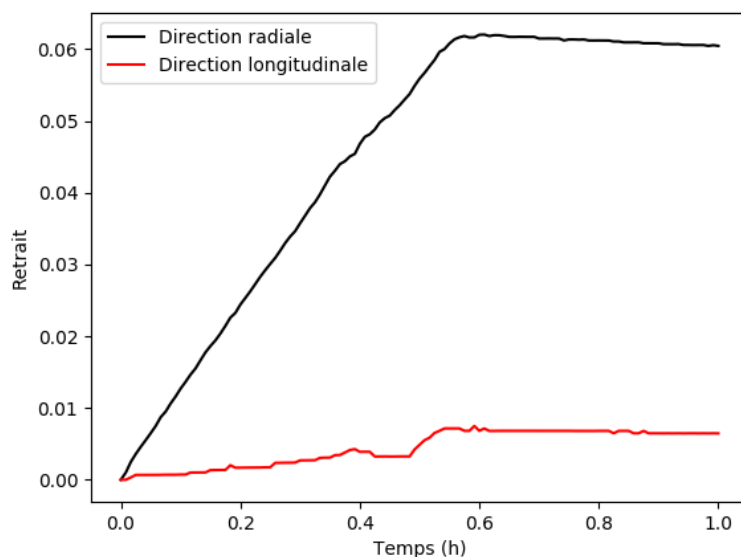


Figure 4.23: Retrait dans les directions radiale et longitudinale du cordon écrasé en fonction du temps

Les deux phénomènes observés lors de l'étude sur le cordon déposé sans écrasement sont présents ici. Bien que le gonflement suite au retrait soit moins marqué ici, une

très grande anisotropie du retrait peut être observée. Le retrait dans la direction radiale est cohérent avec le comportement au séchage de la pâte (6,05%), en revanche le retrait dans la direction longitudinale paraît trop faible (0,65%). Dans le cas présent, il est intéressant de calculer le retrait volumique de ce cordon afin de pouvoir le comparer à celui du cordon déposé. Le retrait volumique est ici de 12,3% contre 14,4% pour le cordon déposé. Le retrait volumique des deux cordons, s'il n'était dû qu'au séchage, devrait être le même puisqu'il dépend uniquement de la teneur en eau initiale du matériau. Il y a donc un phénomène supplémentaire qui entre en jeu et qui provoque cette anisotropie exagérée du retrait de séchage.

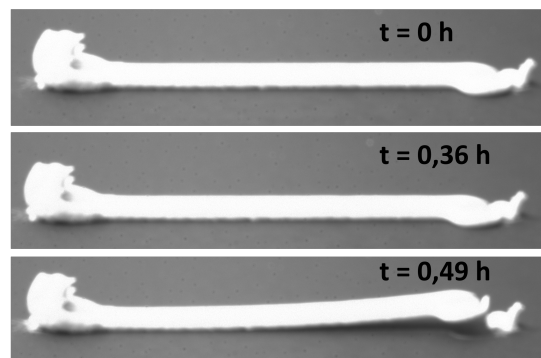
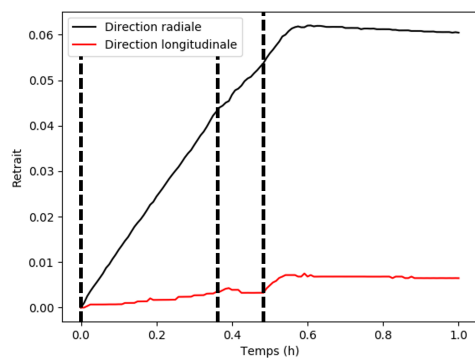


Figure 4.24: Images du cordon écrasé de pâte de porcelaine EZPrint3D-E au cours de son séchage

La Fig. 4.24, qui présente trois images du cordon écrasé à différents moments durant son séchage, met en évidence l'interaction entre le cordon et le support. Le cordon subit très peu de retrait longitudinal pendant une grande partie de son séchage (jusqu'à $t = 0,36 h$) puis il se désolidarise du support en se courbant ($t = 0,49 h$). Une fois que le cordon n'est plus en contact avec le support, la vitesse à laquelle le cordon prend son retrait dans la direction longitudinale augmente. L'adhésion entre le cordon et son support inhibe donc le retrait dans la direction longitudinale, il est de ce fait difficile d'estimer l'impact de l'écrasement du cordon sur l'anisotropie de son retrait de séchage.

Au vu de cette conclusion, il est important de s'intéresser à la raison pour laquelle le cordon se courbe. Une hypothèse peut être avancée pour expliquer ce phénomène. Alors que la partie du cordon en contact avec le support ne peut pas prendre de retrait, la partie supérieure du cordon subit en revanche un retrait pendant le séchage au contact de l'air. Le bas du cordon se retrouve alors en tension par rapport à la partie supérieure. Lorsque les contraintes générées par le séchage sont plus importantes que celles générées par les forces de liaison entre le cordon et son support : le cordon se

décolle, provoquant ainsi la courbure du cordon. Ce phénomène peut être exacerbé si le débit de pâte en sortie de buse n'est pas suffisant par rapport à la vitesse de déplacement de la tête d'impression, ce qui fait que la pâte est étirée. Les contraintes alors générées vont avoir tendance à se relâcher en provoquant la courbure du cordon.

4.2.3 Influence des paramètres d'extrusion

Les études précédentes ont montré que l'extrusion provoquait l'apparition d'une anisotropie du retrait de séchage dans les cordons. Celle-ci est provoquée par l'orientation des plaquettes de kaolinite présentes dans la pâte sous l'effet du gradient de vitesse qui apparaît dans la filière de la buse d'extrusion. Lors de l'utilisation d'une machine d'impression par robocasting, il est courant de modifier les paramètres d'extrusion et notamment la vitesse d'extrusion et le diamètre de la buse. Dans la prochaine partie, on cherchera à évaluer si ces changements ont un impact sur le retrait de séchage de cordons extrudés.

Étude de l'effet de la vitesse d'extrusion sur le retrait

La vitesse d'extrusion est un paramètre du procédé de robocasting qui est amené à varier en fonction des produits à imprimer. Elle est aussi intrinsèquement liée à la vitesse de déplacement de la buse d'extrusion.

Plusieurs vitesses d'extrusion ont été évaluées en utilisant une buse de 1,5 mm de diamètre. Pour chacune d'elle un cordon est extrudé librement puis déposé sur un support avant d'être mis à sécher à l'air libre où ses dimensions et sa masse ont été suivies. Une vitesse d'extrusion stable étant difficile à imposer à la machine dû à la méthode d'extrusion (extrusion à vis avec alimentation par réservoir extérieur sous pression), la mesure a été répétée 3 fois par vitesse. Les vitesses inférieures à 1 cm/s et supérieures à 2 cm/s n'ont pas pu être investiguées à cause des limitations imposées par la machine, notamment la difficulté d'obtenir une vitesse d'extrusion stable. La Fig. 4.25 présente le retrait final moyen des cordons dans la direction radiale pour chacune des vitesses d'extrusion. Le retrait dans la direction longitudinale n'est pas présenté, les valeurs étant trop variables du fait de l'interaction avec le support.

Le retrait de séchage dans la direction radiale semble approximativement constant jusqu'à 1,5 cm/s, puis diminue pour une vitesse de 2,0 cm/s. Puisque tous les cordons ont été séchés sur le même support et dans les mêmes conditions, la variation du retrait subi par chaque cordon pour les différentes vitesses d'extrusion est supposée uniquement attribuée à la variation de la vitesse d'extrusion et non à l'influence du

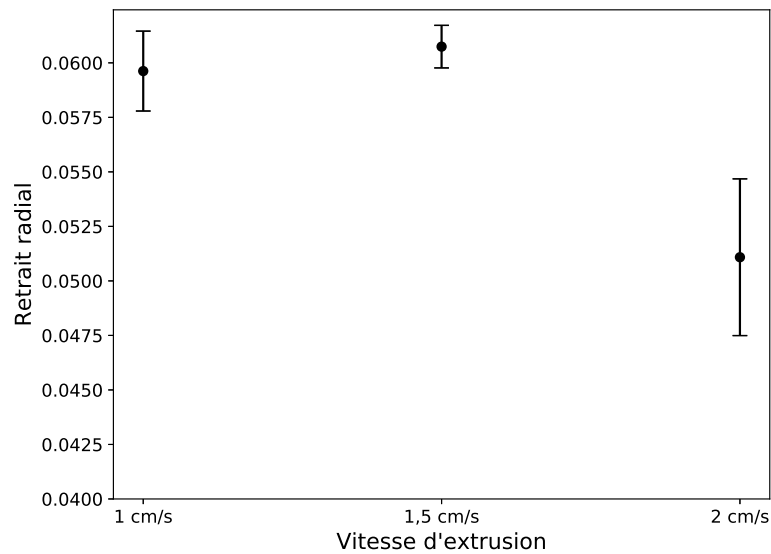


Figure 4.25: Retrait final dans la direction radiale des cordons à différentes vitesses d'extrusion

support. En considérant que le retrait volumique est identique pour l'ensemble des échantillons, ces résultats semblent indiquer une baisse de l'anisotropie du retrait de séchage dans les cordons extrudés à plus de 1,5 cm/s. Feilden et al. expliquent que l'orientation des grains anisométriques dans un cordon extrudé dépend de la durée d'exposition au gradient de vitesse dans la filière [49]. Lorsque la vitesse d'extrusion augmente le temps pendant lequel un grain donné est présent dans la filière diminue, réduisant ainsi la probabilité qu'il soit orienter dans le sens de l'extrusion. Cette baisse de l'anisotropie du retrait peut aussi être due à la disparition du gradient de vitesse dans la filière. En effet, au delà d'une certaine vitesse d'extrusion l'écoulement laminaire, présentant un gradient de vitesse, peut se transformer en un écoulement en bloc, ne présentant qu'un faible gradient de vitesse.

Étude de l'influence du diamètre de la buse sur le retrait

Le diamètre de la buse d'extrusion est un paramètre clé du procédé de robocasting qui peut varier en fonction de la précision et de l'état de surface désirés pour le produit. En effet, plus le diamètre de la buse augmente, plus la résolution d'impression est faible et les interfaces entre les cordons sont prononcées. Néanmoins, plus le diamètre de la buse est grand, plus le produit peut être imprimé rapidement puisque moins de couches sont alors nécessaires pour le fabriquer.

Dans cette partie du travail trois buses de diamètres différents ont été utilisées. Les cordons observés pour chacune des buses ont été extrudés à des vitesses identiques afin de pouvoir observer uniquement l'influence du diamètre de la buse sur le retrait de séchage des cordons.

La Fig. 4.26 présente le retrait final dans les directions longitudinale et radiale pour chacun des diamètres de buse. Une différence de retrait de 15% peut être observée entre les deux directions d'observation sur le cordon extrudé avec la buse de 1,5 mm de diamètre tandis que cette différence est d'environ 6,5% pour les cordons extrudés avec les buses de 2 et 3 mm de diamètre. Une augmentation du diamètre de la buse provoque donc une baisse de l'anisotropie du retrait des cordons extrudés. Ce résultat est en accord avec les résultats obtenus par Feilden, qui observe une augmentation de la taille de la zone au coeur du cordon où les grains anisométriques ne sont pas orientés lorsque le diamètre de la filière augmente. Le rapport volumique des grains orientés et des grains non-orientés étant plus faible, l'anisométrie du retrait de séchage s'en retrouve diminuée.

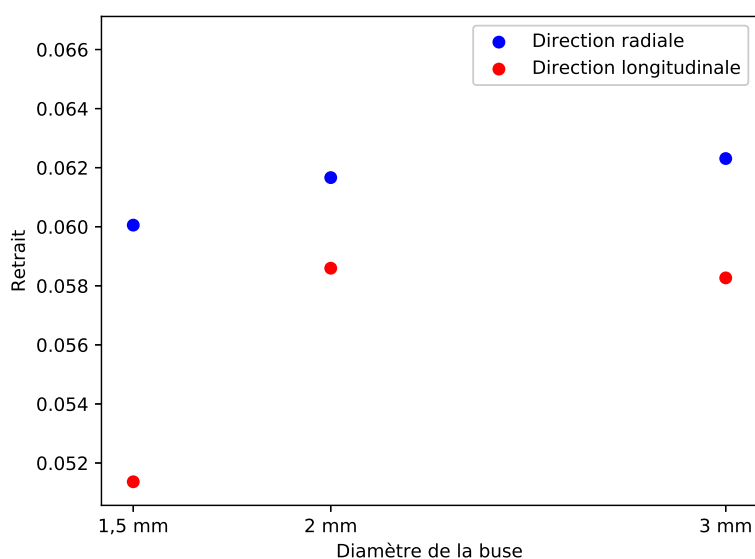


Figure 4.26: Retrait final des cordons extrudés avec des buses d'extrusion de diamètres différents

4.2.4 Influence de l'empilement des cordons

Lors de la fabrication d'un produit par robocasting les cordons sont empilés en couches successives. La hauteur de ces couches est très souvent plus faible que le diamètre de la buse d'extrusion, les cordons étant écrasés pour obtenir une meilleure adhérence

avec la couche précédente. Les cordons sont donc liés entre eux, ce qui pourrait modifier leur comportement lors du séchage en comparaison à des cordons isolés. Pour étudier ce phénomène deux expériences ont été réalisées : la première porte sur la mesure du retrait sur des empilements de cordons proches du support et la seconde se concentre sur la mesure du retrait des cordons éloignés du support.

Étude du retrait de séchage des cordons proches du support d'impression

Les études précédentes ont mis en évidence l'influence du support d'impression sur le retrait de séchage des cordons. L'objectif est maintenant de déterminer si cette influence s'étend aux cordons suivants.

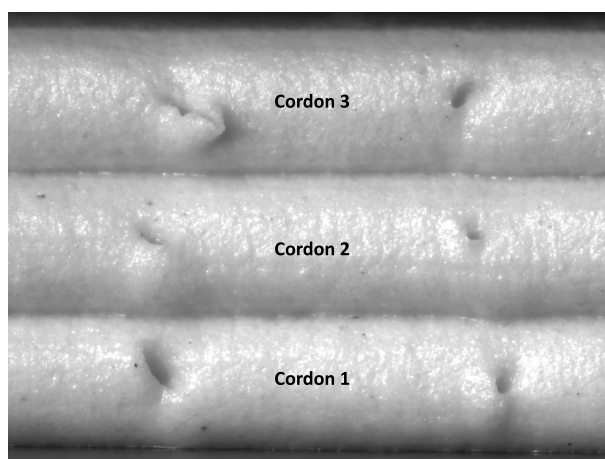


Figure 4.27: Exemple d'image obtenue lors de l'étude d'un empilement, avec numérotation des cordons

Des mesures de retrait de séchage ont été réalisées sur trois empilements de trois cordons chacun à l'aide de la méthode décrite au paragraphe 4.1.2. Les empilements sont séchés à température et humidité relative ambiantes pendant une durée de 4 h. Le retrait de chacun des cordons est mesuré sur l'axe X et sur l'axe Z, ce qui correspond respectivement à la direction longitudinale et à la direction radiale sur un cordon seul. Les cordons sont numérotés de 1 à 3 comme présenté sur la Fig. 4.27.

La Fig. 4.28 présente les retraits mesurés sur chacun des cordons dans les directions X et Z. L'anisotropie du retrait de séchage observée sur les cordons seuls est retrouvée sur chacun des trois cordons étudiés. Le comportement pour le premier cordon est différent de ce qui a été observé pour un cordon écrasé, avec un retrait supérieur à 4% selon X. Cela peut être expliqué par le fait que les forces exercées par le retrait de l'ensemble des cordons empilés sont supérieures à celles exercées par le retrait

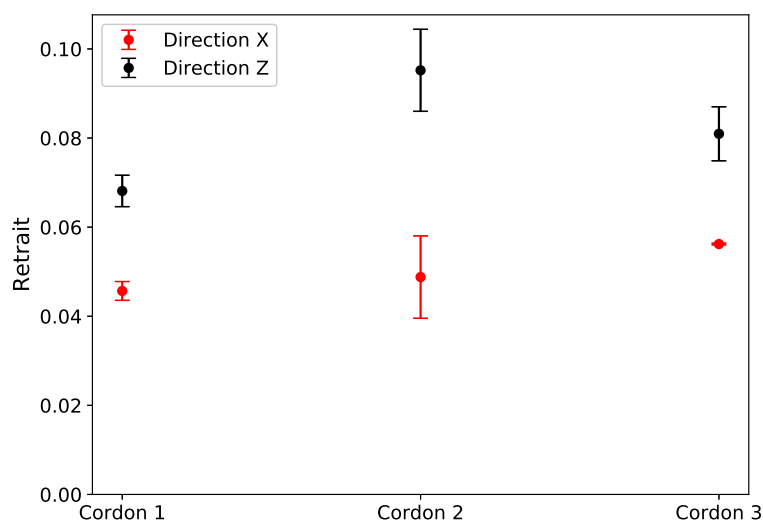


Figure 4.28: Retrait final de chacun des trois cordons de l'empilement dans les directions X et Z

d'un seul cordon écrasé. De ce fait les forces de frottements entre le cordon et le support ont moins d'influence sur le retrait selon X d'un empilement de cordons. Une augmentation du retrait selon X peut néanmoins être observée entre le cordon 1 et le cordon 3, montrant une légère inhibition du retrait dans cette direction qui s'estompe avec la distance par rapport au support.

Dans cette configuration, chacun des cordons a une particularité. Le premier cordon est extrudé sur une surface dure (le support) puis écrasé par le cordon suivant. Le deuxième cordon est extrudé sur une surface déformable puis lui aussi est écrasé par le cordon suivant. Enfin le troisième cordon est uniquement extrudé sur une surface déformable et n'est pas écrasé par l'extrusion d'un cordon supplémentaire. Ces particularités rendent difficile l'analyse des résultats selon Z. Une étude du retrait sur des cordons plus éloignés du support a donc été réalisée.

Étude du retrait de séchage des cordons éloignés du support

Cette étude a pour objectif de déterminer le comportement durant le séchage des cordons sous l'effet de l'ajout de cordons successifs. Les mesures de retraits sont réalisées loin du support d'impression pour s'affranchir de son influence sur le retrait de séchage.

Le retrait des 8^{ème} et 9^{ème} cordons a été mesuré selon Z, lorsque ceux-ci sont soumis au poids d'un nombre de couches croissant, comme illustré sur la Fig. 4.29. Le tableau 4.1

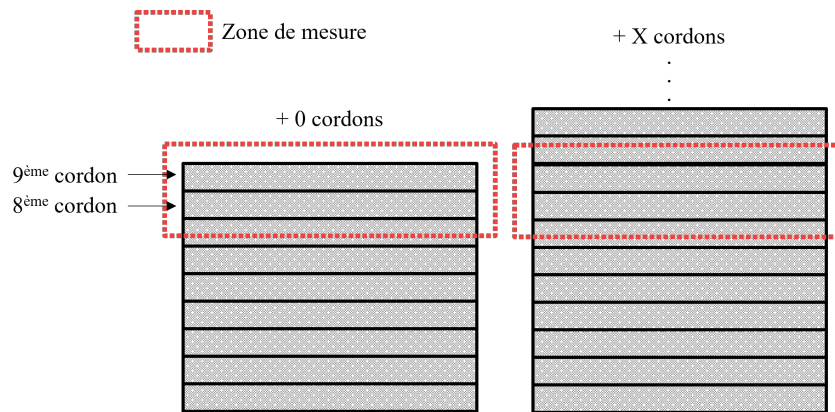


Figure 4.29: Représentation schématique de l'empilement utilisé pour l'étude du retrait de séchage sur les cordons éloignés du support

Nombre de couches supplémentaires	0	2	4	6	8	10
Nombre de couches totales	9	11	13	15	17	19

Table 4.1: Paramètres des empilements utilisés pour l'étude du retrait de séchage des cordons éloignés du support

décrit les différents empilements utilisés pour l'étude.

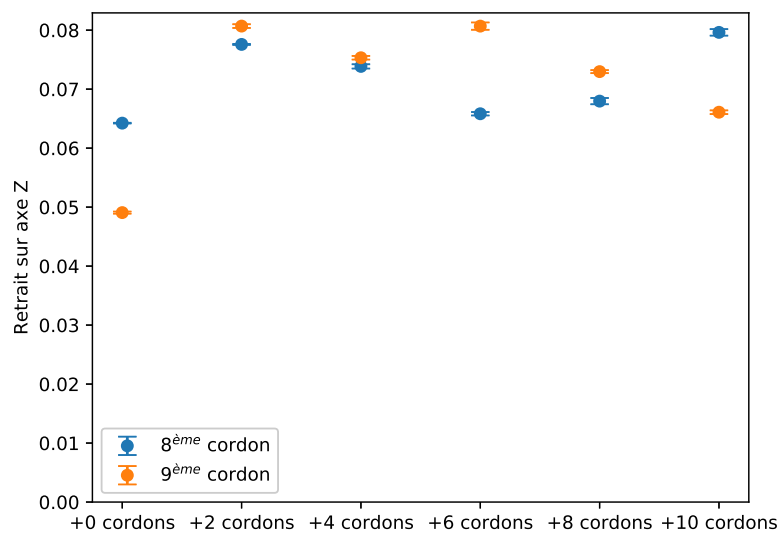


Figure 4.30: Retrait final selon Z des 8ème et 9ème cordons pour chacun des échantillons en fonction du nombre de cordons empilés dessus. Les barres d'erreurs représentent l'incertitude de mesure.

La Fig. 4.30 présente le retrait de séchage dans la direction Z des 8^{ème} et 9^{ème} cordons pour chacun des empilements étudiés. Aucune variation notable n'est observée sur le retrait des deux cordons avec l'augmentation de leur chargement de 2 couches à 10 couches qui pourrait suggérer la présence d'un effet d'affaissement des cordons sous l'effet du poids. En revanche, en l'absence de chargement, le 9^{ème} cordon présente un retrait bien inférieur à celui des cordons soumis à un chargement. Cette différence de retrait peut être expliquée par les contraintes subies par le cordon lors de l'impression de la couche suivante. En effet, lorsqu'une couche est déposée, des forces verticales sont appliquées sur la couche inférieure comme illustré sur la Fig. 4.31. Ces forces peuvent provoquer l'orientation des plaquettes de kaolinites contenues dans la pâte, comme le montre les travaux de Oummedi et al. sur l'anisotropie du retrait dans des échantillons de pâte de kaolin [25].

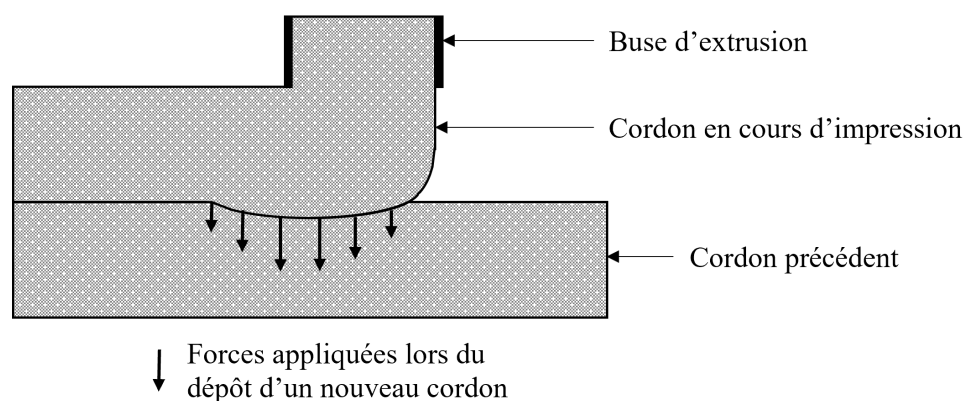


Figure 4.31: Représentation schématique des forces appliquées à une couche lors de l'impression de la couche suivante

4.3 Conclusion

La mesure du retrait de séchage des pâtes céramiques est étudiée depuis de nombreuses années et certaines des méthodes existantes ayant fait leurs preuves ont été présentées. La mesure du retrait dans le cas de produits obtenus par robocasting a cependant nécessité le développement de méthodes innovantes basées sur des observations optiques. Trois méthodes différentes ont été présentées, chacune permettant d'obtenir des informations à des échelles différentes depuis le cordon jusqu'au produit.

L'étude du séchage de cordons extrudés a révélé la présence d'une anisotropie dans leur retrait de séchage : un retrait plus important est observé dans la direction radiale que dans la direction longitudinale. Cette anisotropie est due en partie à une orientation des plaquettes de kaolinite présentes dans la pâte de porcelaine résultant de l'extrusion du cordon. L'interaction entre le cordon et le support d'impression a été mise en évidence par l'étude du retrait sur des cordons écrasés. Lorsqu'un seul cordon est étudié, cette interaction inhibe fortement le retrait dans la direction longitudinale et peut déformer le cordon au cours du séchage. L'analyse des empilements a montré que cette interaction s'étend au-delà de la couche directement en contact avec le support.

Le procédé d'impression de pâte céramique par robocasting soumet la pâte à de fortes contraintes. Celles-ci ont tendance à orienter les grains anisométriques contenus dans la pâte à deux reprises : la première fois lors du passage au travers de la buse d'extrusion, et la seconde fois lors de l'écrasement provoqué par le dépôt de la couche suivante. Le retrait mesuré selon Z sur les cordons ayant subis ces contraintes est d'environ 7,5%, ce qui est bien supérieur aux 6,5% obtenus sur la pâte n'ayant subi aucune mise en forme. Le façonnage par robocasting rend la maîtrise dimensionnelle du retrait de séchage d'un produit céramique plus difficile dans les procédés classiques.

5

Étude du retrait de séchage de produits céramiques obtenus par robocasting

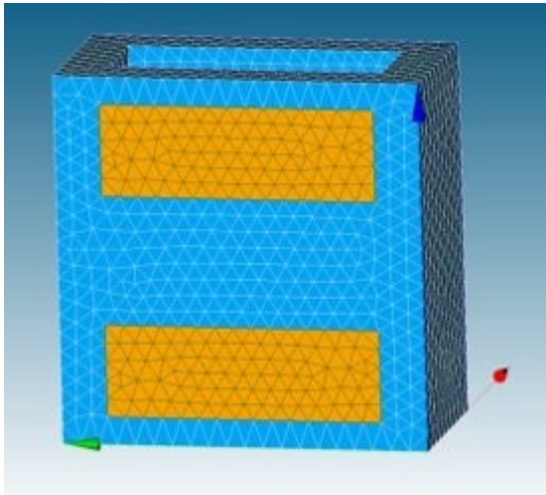
Sommaire

5.1	Séchage d'un produit céramique obtenu par robocasting	112
5.1.1	Prédiction du séchage sur une pièce avec une cavité	113
5.1.2	Étude du séchage d'une pièce avec une cavité	115
5.1.3	Suivi en temps réel du séchage d'un produit céramique	117
5.2	Utilisation du machine learning pour la détection de la fin du séchage	119
5.2.1	Introduction au machine learning	119
5.2.2	Le Deep Learning appliqué au contrôle du séchage	122
5.2.3	Entraînement du modèle et résultats	124
5.3	Conclusion	128

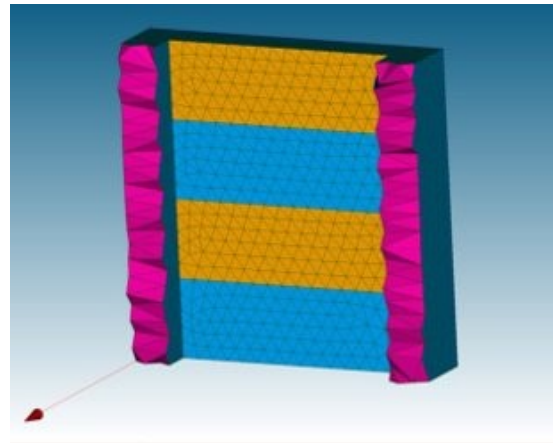
L'OBJECTIF de ce chapitre est de présenter les études du séchage réalisées sur des produits céramiques (i.e. à l'échelle d'un objet) obtenus par robocasting ainsi que les outils développés pour aider la maîtrise du procédé de séchage. Les outils qui ont été développés à la fois pour caractériser les retraits et pour modéliser le séchage seront appliqués à l'étude du séchage d'un produit. Un outil de suivi du retrait de séchage, en temps réel, reposant sur la topologie des produits sera ensuite présenté. Enfin, après une brève introduction au Machine Learning, un modèle permettant de détecter la fin du retrait à partir d'une seule image sera proposé, montrant le potentiel de ces nouveaux outils numériques pour la maîtrise des procédés.

5.1 Séchage d'un produit céramique obtenu par robocasting

Le séchage de produits céramiques fabriqués par robocasting peut révéler des défauts, comme des déformations ou des fissures. La liberté dans la mise en forme des produits, qui est un des intérêts majeurs de la technologie, permet la création de cavités avec pour contrepartie des variations dans les conditions locales de séchage. De plus, les interactions avec le support et l'orientation des grains dans la pâte sont à l'origine de l'anisotropie de retrait lors du séchage. La maîtrise de ces phénomènes est cruciale pour l'obtention de produits exempts de défauts. Dans cette partie le séchage d'une pièce simple présentant une cavité est étudié. Tout d'abord une prédiction du comportement est réalisée à l'aide du modèle numérique décrit dans le chapitre 2, puis la pièce est imprimée et suivi par une caméra pendant son séchage.



(a) Pièce entière avec mise en évidence des zones de mesure du retrait (en orange)



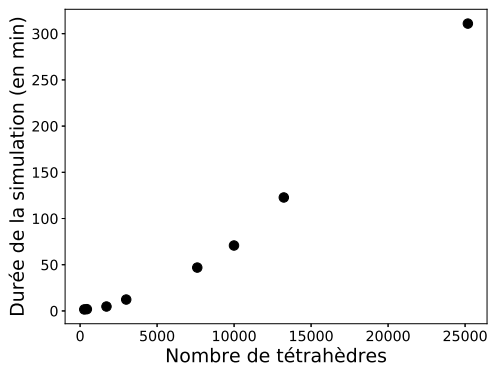
(b) Coupe verticale de la pièce avec mise en évidence des zones utilisées pour la définition d'un gradient de h et de HR

Figure 5.1: Maillage d'une tour de $40 \times 20 \times 40 \text{ mm}^3$ présentant une cavité utilisée pour la prédiction du séchage.

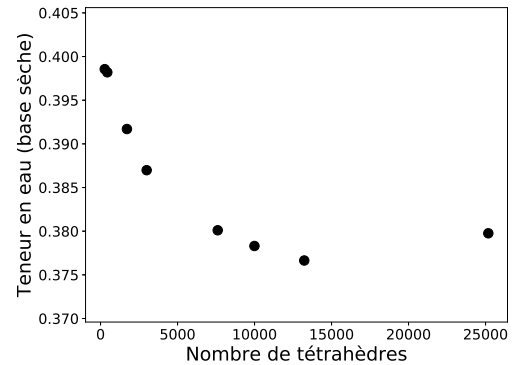
5.1.1 Prédiction du séchage sur une pièce avec une cavité

Une pièce simple présentant une cavité a été modélisée : une tour de $40 \times 20 \times 40 \text{ mm}^3$ avec des parois de 5 mm d'épaisseur. Deux zones ont été définies sur une face de la pièce afin de suivre le retrait tout au long du séchage, comme présenté sur la Fig. 5.1(a). Les faces intérieures de la pièce ont été divisées en quatre zones, illustrées sur la Fig. 5.1(b), de manière à pouvoir faire varier le coefficient de convection h et l'humidité relative de l'air HR sur la profondeur de la cavité. Des conditions aux limites de séchage convectif ont été appliquées sur toutes les faces de la pièce, exceptée celle en contact avec le support où le flux d'eau est considéré nul et la température est imposée à la température ambiante. Le modèle étant basé sur la formulation lagrangienne actualisée, les surfaces où sont appliquées les conditions aux limites vont évoluer avec le retrait faisant ainsi évoluer les flux totaux de masse et de chaleur.

La prédiction du séchage de cette pièce considère un échange avec l'air ambiant du laboratoire, en régime de convection naturelle et dans des conditions de température et d'humidité relative ambiantes. Le coefficient de convection h a donc été fixé à $10 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$, la température de l'air T_{air} à 20°C et l'humidité relative HR à 50% sur les surfaces extérieures. Les conditions aux limites à l'intérieur de la cavité varient, ainsi HR augmente de 50% à 95% et h décroît de 10 à $4 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ entre le haut et le bas de la cavité. La teneur en eau initiale de la pièce a été fixée à 35% pour tenir compte du séchage subi par la pièce pendant son impression.



(a) Évolution de la durée de la simulation avec le nombre de tétrahèdres du maillage



(b) Teneur en eau globale du matériau à l'issue des deux heures de séchage en fonction du nombre de tétrahèdres du maillage

Figure 5.2: Résultat de l'étude de convergence de la géométrie

Une étude de convergence a été réalisée afin de déterminer le maillage optimal, c'est-à-dire celui pour lequel le rapport entre la vitesse de calcul et la précision des résultats est le meilleur. Pour cela, plusieurs simulations avec des maillages contenant un nombre d'éléments croissant ont été réalisées pour un temps de séchage de deux heures. La teneur en eau globale dans la pièce à l'issue de ces deux heures de séchage est utilisée comme grandeur pour évaluer la convergence de la simulation.

Les résultats de l'étude de convergence qui sont présentés sur la Fig. 5.2 permettent de déterminer qu'un maillage avec un nombre de tétrahèdres aux alentours de 7500 présente le meilleur compromis entre temps de calcul et précision des résultats. Le maillage utilisé pour les prédictions du retrait de séchage sur cette pièce est celui présenté par la Fig. 5.1 et qui contient 7649 tétrahèdres.

Le séchage de la pièce a été simulé pendant huit heures dans les mêmes conditions. Le retrait (selon z) a été suivi dans deux zones différentes de la pièce comme présenté sur la Fig. 5.1(a) et les résultats de la simulation sont présentés sur la Fig. 5.3. Une différence de vitesse de retrait peut être observée entre les deux zones de mesure de la pièce. Le retrait finit plus tôt dans la zone supérieure que dans la zone inférieure bien que toutes les deux présentent un retrait final identique. Cela traduit la présence d'un gradient de teneur en eau au sein de la pièce, qui est provoqué par la diminution progressive du coefficient de convection et de l'humidité relative dans la cavité.

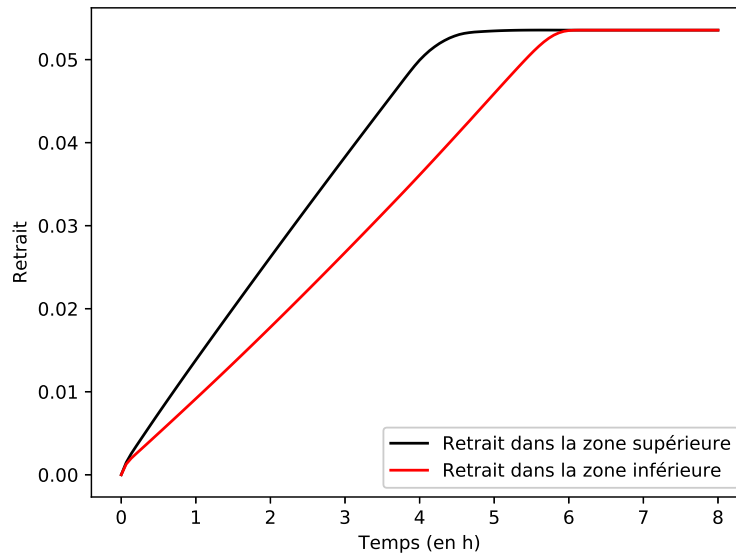


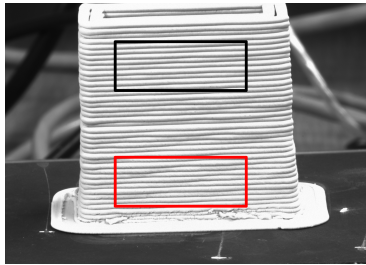
Figure 5.3: Suivi du retrait lors de la prédiction du séchage de la pièce à l'air ambiant (temps de calcul : 4h 14min)

5.1.2 Étude du séchage d'une pièce avec une cavité

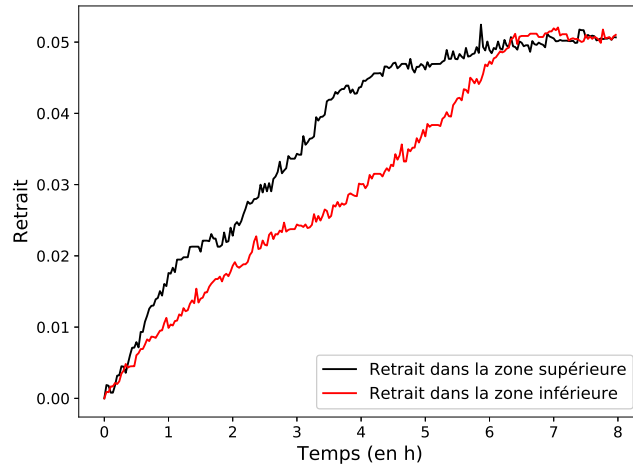
Le retrait de séchage de cette pièce est maintenant étudié expérimentalement. La pièce est imprimée avec une buse de 1,5 mm de diamètre et une hauteur de couche de 1 mm sur un support en PVC recouvert de graphite, comme illustré sur la Fig. 5.4(a). Elle est ensuite placée devant une caméra et des images sont prises tout au long du séchage, comme décrit dans la méthode d'étude de produits imprimés présentée dans le chapitre 4.

La simulation du séchage de cette pièce, réalisée avec le modèle, prédit une fin du retrait de la pièce après environ 6h de séchage à l'air ambiant. La durée d'acquisition choisie pour l'étude du retrait sur la pièce imprimée est de 8h, ce qui doit permettre d'observer l'intégralité de son retrait. À l'issue du séchage, les images obtenues sont analysées pour mesurer le retrait dans la partie supérieure et dans la partie inférieure de la pièce. Ces zones sont représentées sur la Fig. 5.4(a) et les résultats de l'analyse sont reportés sur la Fig. 5.4(b).

L'étude du retrait de séchage de la pièce montre que le retrait total est d'environ 5% et que cette valeur est atteinte pour l'intégralité de la pièce au bout de 6h30 de séchage. Une nette différence de vitesse de retrait entre la zone supérieure et la zone inférieure de la pièce peut également être observée. Puisque le retrait est intimement lié à la



(a) Zones d'étude



(b) Suivi du retrait de séchage dans la direction z de la pièce dans les deux zones d'étude.

Figure 5.4: Suivi du retrait expérimental de séchage de la pièce à l'air libre (18°C et 55% HR).

teneur en eau du matériau, cet écart de retrait pendant le séchage traduit l'existence d'un gradient de teneur en eau dans le matériau. On peut remarquer que le retrait de la pièce est inférieur à celui mesuré sur les empilements (environ 7,5%). Cet écart peut être expliqué par le temps d'impression et de mise en place de la mesure, qui est suffisamment long pour que le retrait ait déjà commencé.

Un autre détail peut être discerné dans les courbes expérimentales de la Fig. 5.4(b). Pendant les premières 15 minutes, les deux zones étudiées présentent des vitesses de retrait similaires avant de diverger. Une explication plausible se trouve dans l'humidité relative de la cavité, qui augmente avec le temps à partir d'une valeur semblable celle de l'extérieur.

Le retrait mesuré expérimentalement sur la pièce est comparé au retrait obtenue par simulation sur la Fig. 5.5. Le retrait total obtenu par simulation est légèrement supérieur à celui mesuré expérimentalement sur la pièce. Cette différence est probablement due au fait que le calcul du retrait simulé est basé sur la mesure du retrait radial d'un cordon seul et non sur celui d'une pièce. La vitesse de retrait est également plus rapide lors de la simulation qu'en conditions réelles, ce qui peut être attribué à la différence entre les conditions de séchage expérimentales (18°C et 55% HR) et celles imposées lors de la prédiction (20°C et 50% HR). Néanmoins le modèle a prédit de manière réaliste le comportement de la pièce lors de son séchage.

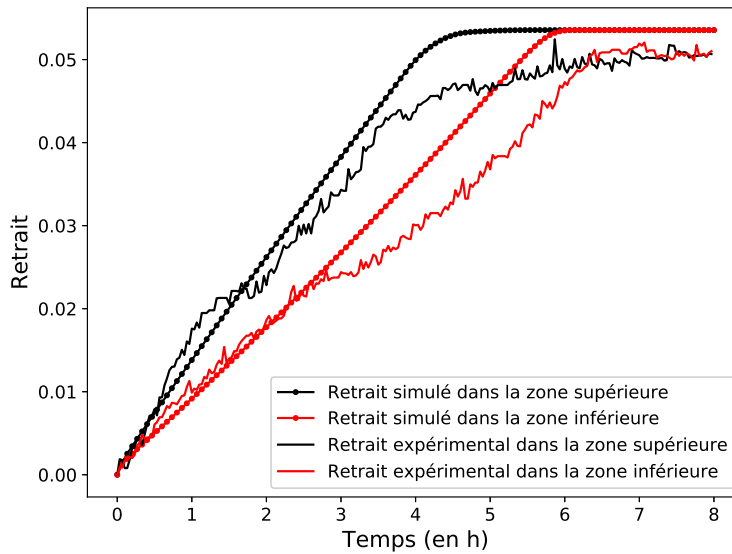


Figure 5.5: Suivi expérimental et prédiction du retrait de séchage de la pièce à l'air libre.

En supposant un retrait total identique dans l'ensemble du produit, la méthode de mesure utilisée ici permet d'obtenir une indication sur l'état de séchage local du produit. Cette information est obtenue sans altération du produit et ce peu importe la forme du produit. La facilité de mise en place de cette méthode en fait une option viable pour le contrôle dimensionnel des produits imprimés en conditions réelles.

5.1.3 Suivi en temps réel du séchage d'un produit céramique

Jusqu'à présent, les mesures du retrait de séchage ont été réalisées une fois le séchage complété et l'ensemble des images acquises. La méthode présentée pour cela est très efficace et permet un suivi précis dans plusieurs zones de la pièce, offrant ainsi la possibilité de mieux comprendre à posteriori le comportement d'un produit lors de son séchage. Cependant, un des intérêts majeurs de ces nouvelles méthodes est leur capacité à être déployées pour assurer le suivi en temps réel du retrait. Ceci pourrait permettre un contrôle en temps réel du séchage en apportant des actions correctives en cours de séchage pour réduire la probabilité d'apparition de défauts. Un programme en langage Python a donc été développé pour suivre le retrait d'une pièce au cours de son séchage tout en donnant à l'utilisateur un retour en temps réel sur le retrait subi par la pièce. Le principe de fonctionnement de cette nouvelle méthode est décrit dans la Fig. 5.6.

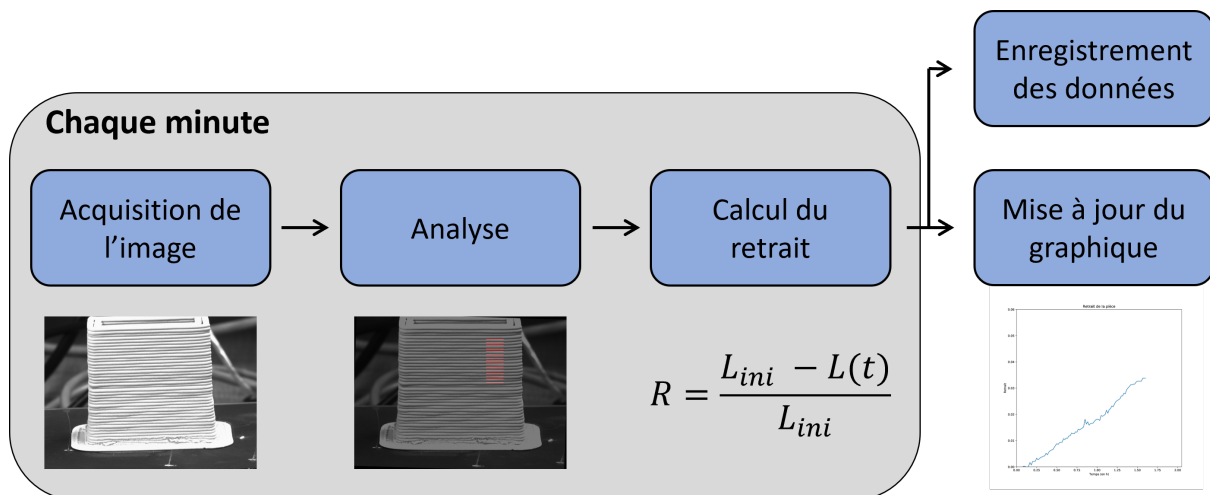


Figure 5.6: Schéma présentant le fonctionnement de la méthode de suivi du retrait de séchage de pièces obtenus par robocasting en temps réel.

Cette méthode a été mise en oeuvre pour suivre le retrait de pièces lors de leur séchage dans une enceinte climatique. Le principe de ces essais est identique à celui de l'étude des pièces séchées à l'air ambiant : la pièce est placée dans une enceinte climatique et une caméra, placée devant la vitre de l'enceinte, permet l'acquisition d'images tout au long du séchage. L'enceinte climatique a été instrumentée pour permettre un suivi de la masse de l'échantillon placé à l'intérieur.

Une pièce identique à celle utilisée pour l'étude précédente a été étudiée en temps réel pendant son séchage dans l'enceinte avec un air à une température de 30°C et une humidité relative de 40%. Le graphique du retrait en fonction du temps, illustré par la Fig. 5.7, donne une information très intéressante pour l'utilisateur puisqu'il permet de connaître le moment exact où le retrait de la pièce est terminé. La fin du retrait marque un point critique dans l'étape de séchage à partir duquel les risques de formation de défauts sont fortement réduits. L'obtention de cette information est donc d'une grande importance pour la maîtrise complète du procédé de séchage.

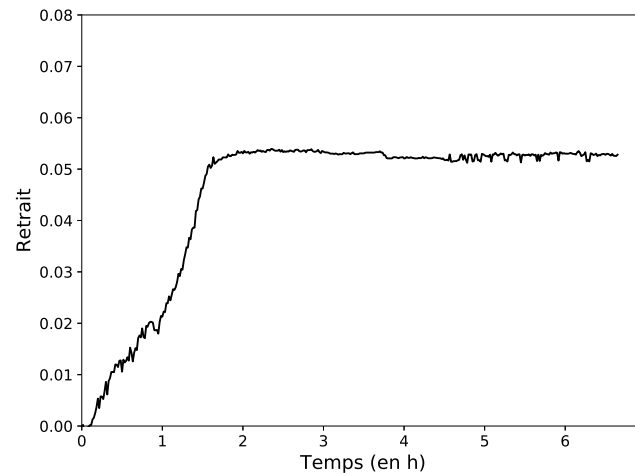


Figure 5.7: Suivi du retrait de séchage en temps réel lors du séchage d'une pièce dans une enceinte climatique (30°C et 40% HR).

5.2 Utilisation du machine learning pour la détection de la fin du séchage

Au cours de cette thèse, l'étude optique du retrait de séchage a été réalisée à l'aide de techniques d'analyse d'images classiques. L'analyse est réalisée par des scripts développés et optimisés manuellement pour identifier des motifs spécifiques. Ces techniques fonctionnent particulièrement bien car les motifs à identifier sont plutôt simple : un contour bien défini pour l'analyse de cordon ou des lignes parallèles pour l'analyse de retrait sur des produits. Néanmoins, les images offrent encore beaucoup d'informations qui ne peuvent que très difficilement être exploitées avec les techniques d'analyse d'image classiques.

5.2.1 Introduction au machine learning

Loin de l'idée du grand public, le machine learning n'est pas une technologie récente. Dès 1959, Arthur Samuel définit le machine learning comme le champs d'étude qui donne aux ordinateurs la capacité d'apprendre sans être explicitement programmé [63]. Il a cependant fallu attendre les années 1990 pour voir apparaître la première application du machine learning adoptée à grande échelle pour une application commerciale : le filtre à spam. Cette application a ensuite rapidement été suivie par de nombreuses autres, de la recommandation de vidéos en streaming au pilotage automatique de

voiture, qui sont aujourd’hui omniprésentes dans notre vie quotidienne.

Contrairement à un programme classique qui nécessite d’établir un certain nombre de règles, plus ou moins important en fonction de la complexité du problème, un programme basé sur le machine learning apprend automatiquement les règles nécessaires pour réaliser la tâche à partir de données d’entraînement. Le programme est plus court, plus facile à entretenir et souvent plus fiable [64].

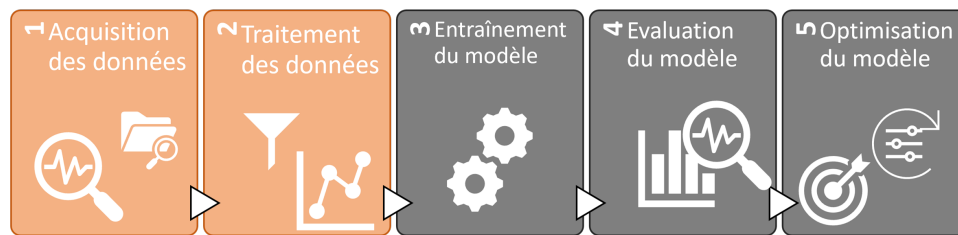


Figure 5.8: Schématisation des étapes du développement d'un programme de machine learning.

Le développement d'un programme de machine learning se déroule en plusieurs étapes présentées sur la Fig. 5.8. Il est tout d'abord nécessaire de collecter les données, qui sont la partie la plus importante d'un programme de machine learning, puisque ce sont avec elles que le modèle est entraîné. En fonction de la nature de la tâche à effectuer par le programme, un nombre plus ou moins important de données est nécessaire pour obtenir un modèle fiable (de quelques dizaines à plusieurs millions pour les modèles les plus complexes). Ces données doivent ensuite être traitées de manière à obtenir la meilleure représentation possible de la tâche à réaliser. Cela peut s'exprimer par la suppression des valeurs aberrantes ou la combinaison de deux paramètres en un seul plus représentatif de la réalité physique par exemple.

Une fois les données préparées, le modèle peut être entraîné et pour cela il est nécessaire de choisir un algorithme. Il existe un grand nombre d'algorithmes de machine learning différents, qui seront plus ou moins adaptés à la tâche à réaliser, et choisir l'un d'entre eux nécessite souvent d'en entraîner plusieurs pour choisir le meilleur. Plusieurs modèles sont comparés en évaluant leurs prédictions sur un jeu de données qui n'a pas été utilisé pour l'entraînement. Une fois que l'algorithme le plus performant a été déterminé, le modèle est optimisé en faisant varier ses hyperparamètres (les paramètres réglable par l'utilisateur, qui ne sont pas modifiés automatiquement lors de l'entraînement) afin de converger vers la meilleure fiabilité.

Il existe deux grandes catégories de modèles de machine learning : les modèles classiques et les modèles de réseau de neurones. Le choix de l'un ou l'autre pour un problème de prédiction repose souvent sur le type de données à analyser. Un modèle classique sera plutôt utilisé avec des données structurées (chiffres, mots, ...) tandis qu'un modèle de réseau de neurones sera généralement utilisé pour des données non-structurées (images, sons, texte ...).

Dans la suite du chapitre, nous nous intéresserons aux modèles de réseaux de neurones. Le premier réseau de neurones artificiels a été présenté en 1943 par McCulloch et Pitts et leur modèle informatique simplifié a été initialement développé pour comprendre comment des neurones pouvaient travailler ensemble dans le cerveau animal pour réaliser des tâches complexes [65]. Malheureusement, en raison du manque de puissance de calcul, les recherches sur les réseaux de neurones sont passées au second plan, derrière le machine learning classique. Cependant, depuis plusieurs années une nouvelle vague d'intérêt pour les réseaux de neurones artificiels est apparue, portée par l'accès à de vastes quantités de données et par l'augmentation de la puissance de calcul maintenant à disposition.

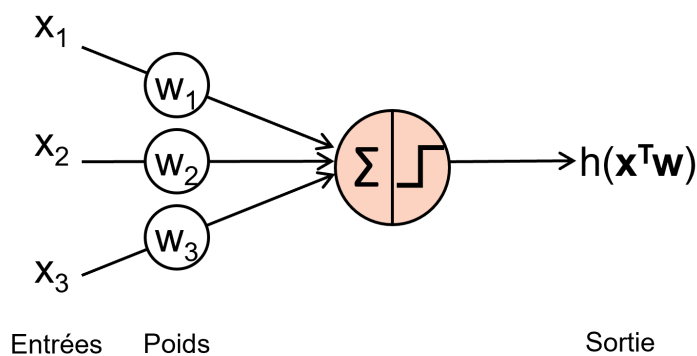


Figure 5.9: Schématisation du fonctionnement d'un neurone artificiel (adapté de [64]).

Les réseaux de neurones sont composés de neurones artificiels. Le plus courant d'entre eux est présenté sur la Fig. 5.9. Créé à l'image d'un neurone biologique, il reçoit plusieurs données en entrée et donne une ou plusieurs données de sortie. Chaque donnée d'entrée est affectée d'un poids, le neurone calcule alors la somme pondérée des entrées et lui applique une fonction dite d'activation. Le neurone présenté sur la Fig. 5.9 utilise par exemple une fonction d'activation heaviside, ce qui en fait une unité logique de seuil ou TLU (Threshold Logic Unit).

Utilisé seul, ce neurone est limité à des problèmes de classification binaire très simples. Il peut cependant être utilisé en grand nombre pour former un réseau de neurones, qui est alors capable de résoudre des problèmes infiniment plus complexes. Ces réseaux sont composés de plusieurs couches de neurones connectées entre elles. La Fig. 5.10 présente un réseau de neurones schématisé composé d'une couche d'entrée, d'une couche cachée et d'une couche de sortie. Par convention, toutes les couches qui ne sont pas celle d'entrée ou de sortie sont appelées des couches cachées. Le réseau de neurones représenté sur la Fig. 5.10 prend par exemple deux valeurs en entrée et donne trois valeurs en sortie.

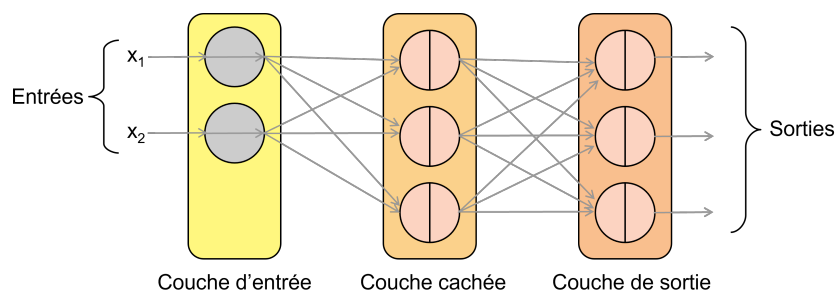


Figure 5.10: Schématisation d'un réseau de neurones artificiels (ANN).

Le terme Deep Learning a initialement été adopté pour désigner les modèles de réseau de neurones contenant plus de 10 couches cachées mais il désigne aujourd'hui tous les modèles de réseaux de neurones artificiels.

5.2.2 Le Deep Learning appliqué au contrôle du séchage

Lors du retrait, la surface d'un produit céramique est couverte d'un film d'eau. La disparition de ce film marque la fin de la majeure partie du retrait. Des images de la surface d'un produit prises lors de son séchage permettent de constater la présence et la disparition de ce film d'eau (Fig. 5.11). La détection fiable de la présence ou non de ce film d'eau permettrait, avec une seule image, de déterminer si le retrait de la pièce est terminé.

Le chapitre 4 a montré l'efficacité des méthodes d'analyse d'images pour le suivi du retrait de séchage d'une pièce imprimée par robocasting. La détection de la présence d'eau en surface du produit serait en revanche très difficile avec une technique similaire. Une approche basée sur une analyse d'image par un réseau de neurones artificiel (ANN) a donc été adoptée.

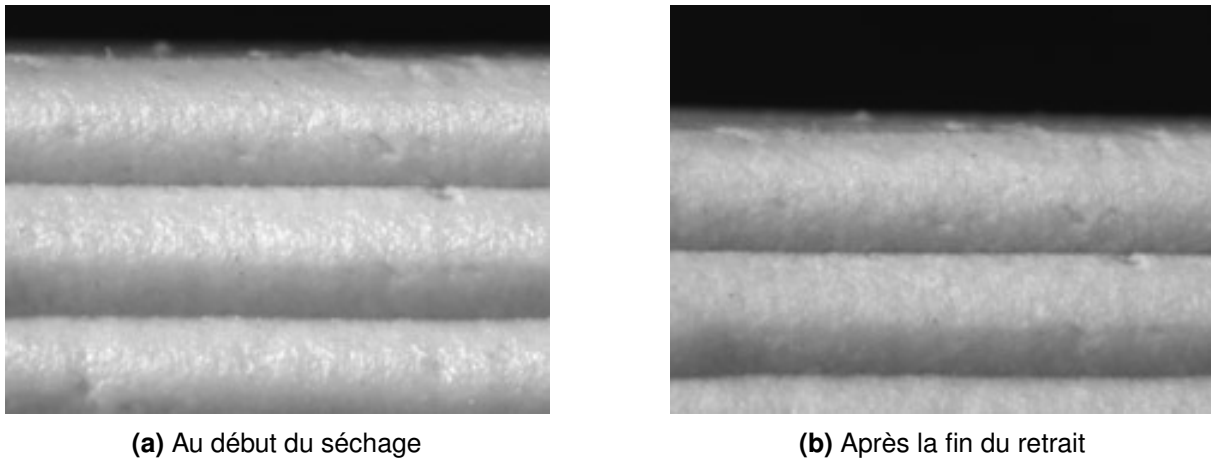


Figure 5.11: Images de la surface d'une pièce obtenue par robocasting.

Parmi les nombreuses architectures d'ANN, une d'entre elles se démarque par son efficacité et sa fiabilité dans les tâches d'analyse d'images : le réseau de neurones convolutif (CNN). Les CNNs ont émergé de l'étude du cortex cérébral visuel et sont utilisés dans la reconnaissance d'images depuis les années 1980 [66], [67]. Cette architecture tient son nom de couches de neurones spécifiques, appelées des couches de convolution, qui permettent d'extraire des particularités et des informations d'une image. Contrairement aux couches de neurones classiques, les couches de convolution conservent la représentation en 2D de l'image permettant ainsi de conserver les informations spatiales. Les CNNs comportent aussi au moins une couche de regroupement dont le rôle est d'agréger les pixels voisins ensemble dans le but de réduire la taille de l'image et de faire ressortir ses particularités.

Un CNN a donc été développé dans le but d'identifier la présence d'eau de surface sur des images de produits obtenus par robocasting au cours du séchage. Cette information permet de conclure sur le fait que le retrait est fini ou en cours. La prédiction souhaitée est donc qualitative ce qui nécessite un modèle de classification. Seules deux prédictions sont possibles, il s'agit donc d'un modèle de classification binaire. La Fig. 5.12 présente le modèle sous la forme d'un sommaire. Le modèle a été développé à l'aide de Keras, une librairie open-source donnant accès à une interface en langage Python pour le développement d'ANN [68].

Le modèle est constitué de six couches : une couche d'entrée, quatre couches cachées et une couche de sortie. La couche d'entrée (Input Layer) prend simplement l'image et la transmet à la couche de normalisation (Rescaling) dont le rôle est de mettre à l'échelle les valeurs des pixels de manière à les borner sur l'intervalle $[0, 1]$. La couche de convolution (Conv2D) extrait les informations de l'image, et la couche de

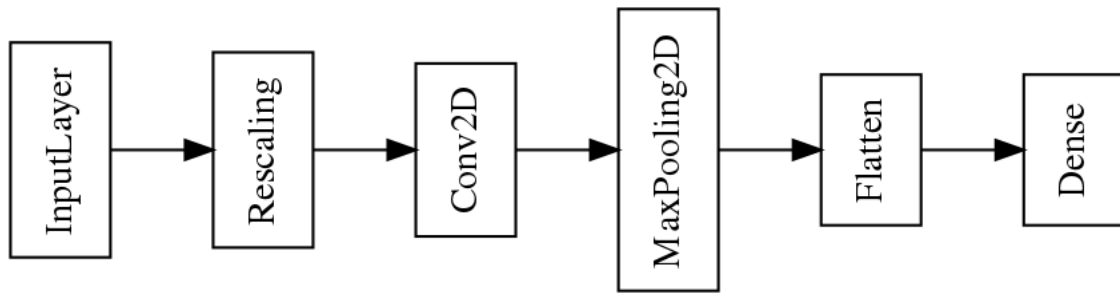


Figure 5.12: Représentation schématique du modèle CNN développé pour l'analyse des images.

regroupement (MaxPooling2D) divise par 2 les dimensions de l'image en rassemblant les pixels 4 à 4 tout en conservant uniquement la plus haute valeur d'intensité. L'image est alors toujours sous la forme d'une matrice en deux dimensions et le rôle de la couche d'écrasement (Flatten) est de transformer cette matrice en un vecteur pour pouvoir effectuer la connexion avec la couche de sortie (Dense). La couche de sortie est une couche dense, c'est à dire que chacun des neurones qui la compose est connecté à l'intégralité des neurones de la couche précédente. Le nombre de neurones qui composent la couche de sortie dans un modèle de classification est égal au nombre de classes possibles pour la prédiction. Ici la couche de sortie est composée de deux neurones puisque seuls deux résultats sont possibles (retrait fini ou en cours). Chacun des deux neurones de la couche de sortie calcule une probabilité à partir des valeurs de l'ensemble des neurones de la couche précédente et le neurone ayant la probabilité la plus élevée donne le résultat de la prédiction.

5.2.3 Entraînement du modèle et résultats

Le modèle a été entraîné sur des images obtenues lors du suivi du séchage d'empilements de 20 cordons de pâte de porcelaine. Le montage expérimental utilisé pour les obtenir est similaire à celui utilisé pour l'étude des empilements (Fig. 4.8). Les images ont été séparées manuellement en deux catégories selon que le retrait est en cours ou terminé. La Fig. 5.13 présente un exemple d'images utilisées pour entraîner le modèle.

Avant l'entraînement du modèle, les images sont séparées en deux jeux : un jeu d'entraînement et un jeu de test. Le jeu d'entraînement, contenant environ 80% des images initiales, sert à entraîner le modèle tandis que le jeu de test, contenant les 20% restant est utilisé pour évaluer le modèle une fois son entraînement terminé. Au total, presque 3600 images ont été utilisées.

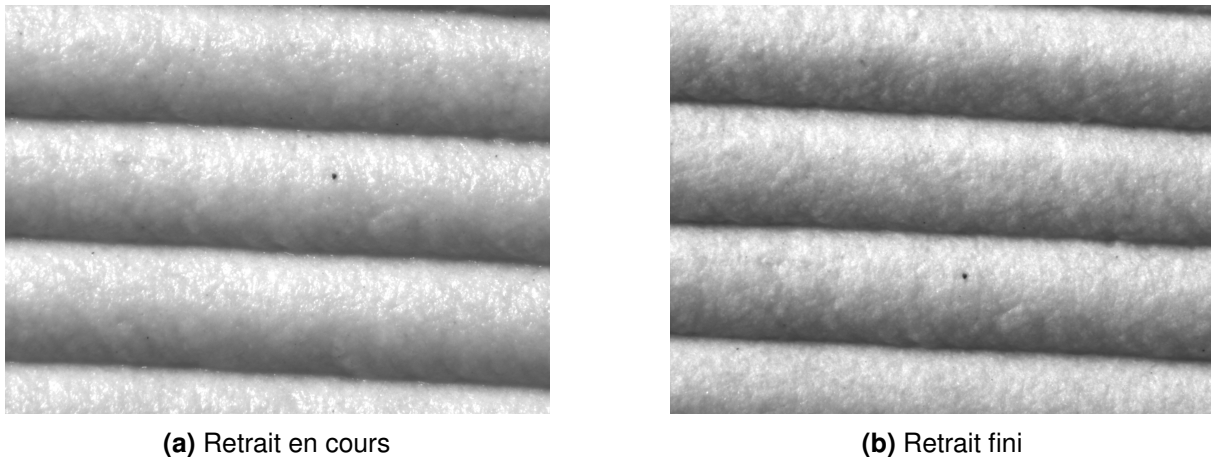


Figure 5.13: Exemples d'images utilisées pour l'entraînement du modèle et présentant ou non un film d'eau à la surface du produit.

L'entraînement du modèle se divise en plusieurs cycles, souvent appelés des époques. Une époque correspond à l'entraînement du modèle sur l'intégralité des données du jeu d'entraînement. L'objectif de l'entraînement est de réduire la valeur de la fonction de perte. Cette fonction représente l'écart entre la cible et la prédiction, c'est-à-dire la fidélité de la modélisation des données d'entraînement du réseau de neurones. Pendant l'entraînement du modèle, la fonction de perte et la précision du modèle sont évaluées sur le jeu d'entraînement à la fin de chaque époque. Le modèle a été entraîné pendant 20 époques et l'évolution de la fonction de perte et de sa précision sur le jeu d'entraînement sont présentées sur la Fig. 5.14.

La fonction de perte ne peut être utilisée que pour comparer le modèle à différents moments de son entraînement puisque son ordre de grandeur dépend des données d'entrée du un modèle. En revanche, la Fig. 5.14 montre que le modèle a convergé vers une valeur de précision de 99,7% au bout de 20 époques. Il prédit donc de manière très fiable le jeu d'entraînement. Il est cependant nécessaire d'évaluer le modèle sur le jeu de test afin de déterminer sa capacité prédictive. Les images du jeu de test ont donc été données au modèle et ses prédictions sont comparées aux cibles (retrait fini ou en cours). Les résultats sont présentés par une matrice de confusion sur la Fig. 5.15. Cette matrice permet de rendre compte de la qualité des prédictions du modèle (predicted label), en les comparant aux cibles (true label). La Fig. 5.15 montre que pour les 255 images où le retrait était fini, le modèle a fait la bonne prédiction à tous les coups (255 retrait fini contre 0 retrait en cours). En ce qui concerne les images où le retrait était en cours, le modèle a fait la bonne prédiction 459 fois et s'est trompé 5 fois. La précision du modèle sur des données sur lesquelles il n'a pas été entraîné est donc de 99,3%.

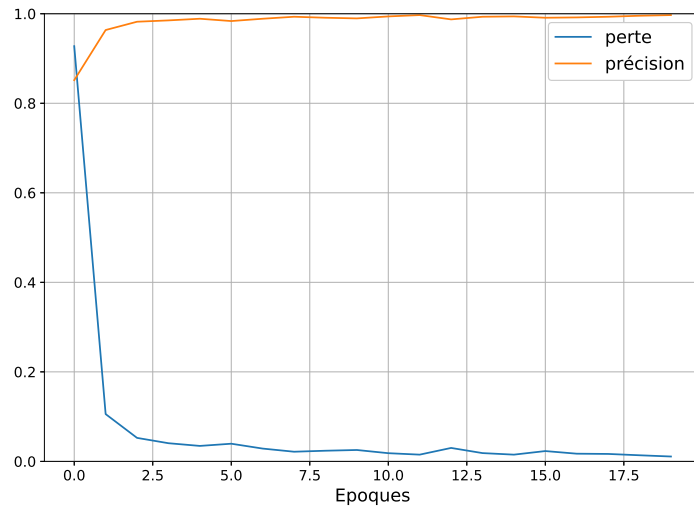


Figure 5.14: Évolution de la fonction de perte et de la précision du modèle sur le jeu d'entraînement.

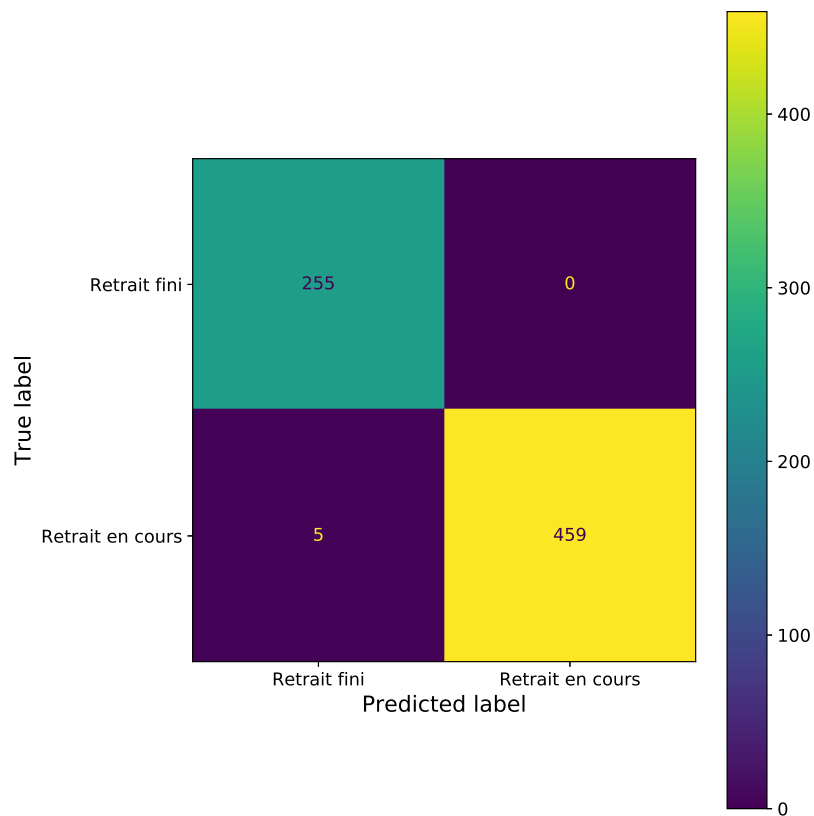


Figure 5.15: Matrice de confusion des prédictions du modèle sur le jeu de test. Les valeurs sur la diagonale $y=x$ donnent les erreurs de prédiction.

Le modèle de Deep Learning présenté dans cette partie pour prédire la présence d'un retrait sur une pièce en cours de séchage est fiable à plus de 99%. Les images ont cependant été réalisées dans des conditions très contrôlées ce qui a permis de grandement réduire la quantité de données nécessaire à l'entraînement du modèle. La faible variation de luminosité, d'état de surface et de forme des produits ont également permis de réduire la complexité du modèle. Le déploiement d'un modèle similaire dans un environnement de production nécessiterait donc un plus grand nombre de données et un modèle plus optimisé. Néanmoins, le principe d'un contrôle fiable de la fin du retrait est clairement démontré.

5.3 Conclusion

La simulation du séchage d'une pièce présentant une cavité a permis de prédire l'apparition d'une différence de vitesse de retrait dans la pièce traduisant la présence d'un gradient de teneur en eau. Cette prédiction a été confirmée par l'étude expérimentale de cette même pièce imprimée par robocasting et séchée dans des conditions similaires à celles utilisées pour la simulation. L'expérience a permis de prouver la fiabilité du modèle pour la prédiction du séchage de pièces céramiques et de montrer l'efficacité de la nouvelle méthode de suivi optique et non-destructif du retrait de séchage de produits céramiques obtenus par robocasting. Par la suite, Une méthode innovante de suivi du retrait de séchage en temps réel a été développée permettant d'identifier, en temps réel pendant le séchage, le moment critique où la majeure partie du retrait se termine.

Pour ouvrir vers de nouvelles perspectives, un modèle de machine learning basé sur une architecture de réseau de neurones particulièrement adaptée à l'analyse d'images (réseau de neurones convolutif) a été développé avec pour objectif d'identifier si un produit est en cours de retrait ou non. Pour cela, le modèle identifie pour chaque image prise pendant le séchage la présence d'eau en surface du produit et donne une prédiction. L'entraînement de ce modèle sur les images obtenues en environnement contrôlé montre le potentiel de cette méthode pour le détecter la fin de l'étape de retrait avec une application potentielle pour le contrôle du séchage en production.

Plusieurs outils permettant la prédiction, le suivi et le contrôle du retrait de séchage de produits céramiques obtenus par robocasting ont été développés et testés. L'utilisation de ces outils permet une meilleure compréhension ainsi qu'un meilleur contrôle sur le procédé de séchage. Le couplage de ces outils à une boucle d'asservissement connectée à un système de régulation de l'atmosphère de séchage pourrait permettre un contrôle total du procédé de séchage en vue d'optimisation et de réduire drastiquement l'apparition de défauts dans les produits.

Conclusion

LE séchage est une étape importante du procédé de fabrication de produits céramiques par robocasting. Lors de cette étape, le produit subit d'importantes variations dimensionnelles liées au départ de l'eau. La maîtrise de ces retraits de séchage est un frein dans le développement du robocasting. L'obtention de produits secs de bonnes dimensions et exempts de défaut est critique pour rendre cette technologie plus mature. Avec cet objectif en vue, plusieurs axes de recherche ont été explorés. Un modèle numérique par éléments finis du séchage a été développé puis complété par des mesures des propriétés physiques d'une pâte de porcelaine. Plusieurs méthodes d'analyse d'images ont été développées puis mises en application pour étudier les retraits sur des produits de différentes tailles obtenus par robocasting. Ces différents outils ont été mis au point en vue d'une intégration dans un système de contrôle en temps réel du séchage.

La première étape du travail a été de développer un modèle multiphysique du séchage combinant les transferts de masse et de chaleur ainsi que le retrait de séchage. Le modèle utilise une méthode de déformation du maillage, la formulation lagrangienne actualisée, pour simuler de manière réaliste le retrait subi par le produit à chaque étape de calcul. Le modèle a été validé en utilisant des données issues de la littérature pour une pâte d'alumine.

L'influence des données d'entrée du modèle a été investiguée en ce qui concerne en particulier les caractéristiques de l'air de séchage et le coefficient de diffusion équivalent de l'eau dans le matériau. Il a ainsi été mis en avant le rôle important du coefficient de diffusion équivalent sur les résultats. La partie expérimentale du travail a porté sur une pâte de porcelaine développée par Imerys pour l'application de robocasting. Quelques caractérisations de base dans l'étude des céramiques ont été réalisées sur cette pâte avant de s'attacher à l'estimation du coefficient de diffusion équivalent qui varie de $6,2 \times 10^{-8}$ à $8,6 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ avec un pic à $2,2 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Ces mesures ont permis de mettre en évidence le comportement particulier de cette pâte, qui se rapproche de celui observé dans la littérature pour les matériaux comportant deux distributions en taille de pores. L'évolution de l'activité de l'eau en fonction de la teneur en eau a également été déterminée. Enfin, une estimation du coefficient de convection a été obtenue pour un séchage à l'air libre et dans une enceinte climatique.

La mesure du retrait est un point clé pour la compréhension et la maîtrise de l'étape de séchage. Une première mesure, basée sur une méthode en place au laboratoire utilisant un capteur laser a permis l'implémentation dans le modèle d'une relation empirique du retrait en fonction de la teneur en eau locale du matériau. Par la suite, plusieurs méthodes optiques, non-destructives et adaptées aux produits obtenus par robocasting, ont été développées pour permettre le suivi du retrait sur des échantillons de différentes tailles. Ainsi, l'étude de cordons extrudés de pâte de porcelaine a permis de mettre en évidence une forte anisotropie de retrait entre la direction radiale (environ 7%) et la direction longitudinale (environ 4%), causée par l'orientation des grains anisométriques lors de l'extrusion. Le suivi du retrait sur des cordons déposés sur de l'huile et sur des cordons écrasés a montré que le retrait est inhibé par les forces de frottements entre le support et le cordon. Cela a pour conséquence de réduire le retrait volumique final du cordon et de générer des contraintes internes, pouvant causer l'apparition de déformations.

Le comportement au séchage de cordons dans un empilement a également été investigué. Le suivi du retrait des cordons proches du support a permis d'observer que l'adhésion avec le support inhibe le retrait de séchage sur plusieurs couches d'un produit, et pas uniquement sur la première. Un suivi du retrait des cordons d'un empilement lorsqu'ils sont soumis à la charge d'un nombre de couches croissant a ensuite été réalisé. Une nette différence de retrait a été observée entre le dernier cordon d'un empilement (environ 5%) et les suivants (environ 7,5%), ce qui montre que l'extrusion

d'une couche applique des contraintes suffisantes sur la couche inférieure pour réorienter les grains.

Ces études sur le retrait de séchage des cordons dans différentes configurations montrent bien la complexité qu'ajoute la mise en forme par robocasting sur le contrôle dimensionnel du produit final. Trois étapes différentes de ce procédé imposent des contraintes qui peuvent influencer le retrait de séchage du matériau : l'extrusion, le dépôt, et l'écrasement par le dépôt de la couche suivante.

Le retrait de pièces obtenues par robocasting a été suivi à l'aide d'une méthode innovante se basant sur la détection des interfaces entre cordons en exploitant la variation de contraste. Une pièce de 4 cm de hauteur présentant une cavité a été étudiée. Les prédictions du modèle ont été comparées aux retraits mesurés expérimentalement et une différence de vitesse de retrait dans différentes zones de la pièce a été observée dans les deux cas. Cela est dû à la difficulté du renouvellement de l'air dans la cavité, qui se charge en vapeur d'eau au cours du temps réduisant ainsi la vitesse de séchage. Ce phénomène, vérifié expérimentalement, met en évidence la bonne concordance des prédictions avec la réalité.

L'utilisation de méthodes innovantes pour la maîtrise de l'étape de séchage dans les procédés céramiques, peut permettre l'amélioration des procédés existants. Pouvoir détecter la fin du retrait est un point crucial pour maîtriser le séchage car le risque de défauts est moins important quand le retrait est terminé. D'un point de vue industriel, le séchage peut être accéléré après ce point critique. Deux voies ont été explorées pour obtenir cette information.

La première utilise les méthodes et outils développés lors cette thèse qui permettent de prédire, et de suivre, à posteriori, le retrait de séchage des produits céramiques obtenus par robocasting. Un outil de suivi du retrait de séchage en temps réel a été développé. Il donne une information sur l'état du retrait de la pièce à chaque instant, offrant ainsi une grande liberté sur le contrôle de l'étape de séchage.

La deuxième voie explorée est celle de l'analyse d'image par machine learning. Un modèle de machine learning a été développé pour l'identification de la fin du retrait par analyse d'image. Le modèle a été entraîné et validé sur des images de la surface de produits acquises durant l'étape de séchage. Il prédit avec une précision de 99,3%, et à

l'aide d'une seule image, si le retrait du produit est fini. Ce travail montre que l'utilisation du machine learning peut être intéressante pour l'étude du séchage et qu'elle pourrait apporter un regard nouveau sur ce champs de recherche centenaire.

Les outils présentés dans cette thèse, pour la prédiction et le suivi du retrait de séchage, ont été développés avec pour objectif une intégration dans une boucle de régulation du séchage. Ce système permettrait de prévoir, par simulation, des éventuelles hétérogénéités de retrait durant le séchage et de les corriger par l'action de ventilateurs ou d'éléments chauffants. Un suivi optique du retrait en temps réel pourrait déceler retrait différentiel, et le cas échéant décider sur des actions correctives pour y remédier.

Les résultats de l'étude du retrait sur les cordons ont montré que le modèle qui a été développé, basé sur une approche statique, présente des limites, la pâte exhibant un comportement dynamique durant le séchage. Ainsi, dans le but de prédire le séchage de manière plus réaliste, il serait nécessaire de prendre en compte des conditions limites uniquement en termes de forces, permettant ainsi la modélisation du contact avec le support. Cela nécessite d'étendre le modèle du lagrangien actualisé à un modèle dynamique. Afin d'étalonner ce modèle, il serait alors nécessaire de développer des dispositifs expérimentaux pour mesurer les forces d'adhésion d'un cordon avec son support.

Les méthodes de mesure du retrait développées lors de la thèse, en particulier celle pour la mesure sur les pièces complètes, peuvent être davantage optimisées pour réduire le bruit de mesure. Pour aller plus loin, des techniques de mesure du retrait basées sur la corrélation d'images pourraient également être développées, ce qui permettrait d'obtenir des informations très fines sur le champ de déformations en surface des pièces.

Dans le chapitre 5, il a été montré qu'il est possible d'estimer la fin du retrait d'un produit obtenu par robocasting par machine learning. Ce principe pourrait être étendu à des produits obtenus par différentes voies de mise en forme. Pour aller plus loin, il serait intéressant de suivre automatiquement l'avancée du front de séchage en surface d'un produit au cours du temps. L'utilisation judicieuse de ces technologies émergentes pourrait conduire à de grandes avancées dans la compréhension des phénomènes ayant place durant le séchage de produits céramiques.



Bibliographie

Sommaire

Références	134
Liste des travaux	141

Références

- [1] Q. Liu, W. F. Lu, and W. Zhai, “Toward stronger robocast calcium phosphate scaffolds for bone tissue engineering: a mini-review and meta-analysis,” *Biomaterials Advances*, vol. 134, p. 112578, 2022. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0928493121007189>.
- [2] M. H. Monfared, A. Nemati, F. Loghman, *et al.*, “A deep insight into the preparation of ceramic bone scaffolds utilizing robocasting technique,” *Ceramics International*, vol. 48, no. 5, pp. 5939–5954, Mar. 2022. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0272884221036919>.
- [3] Z. Li, J. Li, H. Luo, *et al.*, “Direct ink writing of 3d piezoelectric ceramics with complex unsupported structures,” *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 42, no. 9, pp. 3841–3847, Aug. 2022. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0955221922002163>.
- [4] R. W. Ford, *Ceramics Drying*. Elsevier, 1986.
- [5] D. Brosnan and G. Robinson, *Introduction to Drying of Ceramics: With Laboratory Exercises*. Wiley, 2003. [Online]. Available: <https://books.google.fr/books?id=9JviAAAACAAJ>.
- [6] A. Ketelaars, “Drying deformable media : kinetics, shrinkage and stresses,” Ph.D. dissertation, Technische Universiteit Eindhoven, 1992.
- [7] J. Fourier, *Théorie analytique de la chaleur*. Firmin Didot, Père et Fils, 1822.
- [8] A. Fick, “Über diffusion,” *Poggendorff’s Annalen der Physik und Chemie*, vol. 94, pp. 59–86, 1855.
- [9] H. Darcy, *Les fontaines publiques de la ville de Dijon*, V. D. éd., Ed. Libraire des corps impériaux des ponts et chaussées et des mines, 1856.
- [10] W. Lewis, “The rate of drying of solid materials,” *Ind. Eng. Chem.*, vol. 13, pp. 427–432, 1921.
- [11] T. Sherwood, “The drying of solids,” *Ind. Eng. Chem.*, vol. 21, pp. 12–16, 1929.

- [12] N. Ceaglske and O. Hougen, "Drying of granular solids," *Ind. Eng. Chem.*, vol. 29, pp. 805–813, 1937.
- [13] O. Krischer and K. Kröll, *Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknungstechnik*. Springer Verlag, 1956.
- [14] D. . d. V. J. R. Philip, "Moisture movement in porous materials under temperature gradients," *Trans. Am. Geophys. Union*, vol. 38, pp. 119–203, 1957.
- [15] S. Whitaker, "Simultaneous heat, mass, and momentum transfer in porous media: a theory of drying," in *Advances in Heat Transfer*, J. P. Hartnett and T. F. Irvine, Eds., vol. 13, Elsevier, Jan. 1977, pp. 119–203. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0065271708702235>.
- [16] J. C. Slattery, *Flow of viscoelastic fluids through porous media*, Dec. 1966. [Online]. Available: <https://doi.org/10.2118/1684-MS>.
- [17] P. Perre, "The proper use of mass diffusion equations in drying modeling: introducing the drying intensity number," *Drying Technology*, vol. 33, p. 150 911 054 049 005, Sep. 2015.
- [18] W. G. Gray, "A derivation of the equations for multi-phase transport," *Chemical Engineering Science*, vol. 30, no. 2, pp. 229–233, Feb. 1975. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0009250975800108>.
- [19] S. Whitaker, "Coupled transport in multiphase systems: a theory of drying," *Advances in Heat Transfer*, pp. 1–102, Jul. 1998.
- [20] C. M. Marle, "On macroscopic equations governing multiphase flow with diffusion and chemical reactions in porous media," *International Journal of Engineering Science*, vol. 20, no. 5, pp. 643–662, Jan. 1982. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0020722582901185>.
- [21] B. Poling, J. Prausnitz, and J. O'Connell, *The Properties of Gases and Liquids 5E* (McGraw Hill professional). McGraw-Hill Education, 2000. [Online]. Available: <https://books.google.fr/books?id=9tGc1C3ZRX0C>.
- [22] J. Vasseur, "Séchage : principes et calcul d'appareils séchage convectif par air chaud (partie 1)," fre, *Techniques de l'ingénieur Opérations unitaires. Génie de la réaction chimique*, vol. base documentaire : TIP452WEB, no. ref. article : j2451, Mar. 2009. [Online]. Available: <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/procedes-chimie-bio-agro-th2/operations-unitaires-evaporation-et-sechage-42316210/sechage-principes-et-calcul-d-appareils-j2451/>.
- [23] F. P. Incropera, *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. 1981.

- [24] L. Lallemand, J. Petit, S. Lalanne, *et al.*, “Modeling of the green body drying step to obtain large size transparent magnesium-aluminate spinel samples,” *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 34, no. 3, pp. 791–799, Mar. 2014. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S095522191300455X>.
- [25] S. Oummadi, “Drying behaviour of ceramic green bodies : experimental characterization and numerical modelling,” Theses, Université de Limoges, Dec. 2019. [Online]. Available: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-02495750>.
- [26] F. Incropera, D. DeWitt, T. Bergman, and A. Lavine, *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. Wiley, 2007. [Online]. Available: https://books.google.fr/books?id=%5C_P9QAAAAMAAJ.
- [27] G. W. Scherer, “Theory of drying,” *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 73, no. 1, pp. 3–14, Jan. 1990. [Online]. Available: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1990.tb05082.x>.
- [28] H. H. Macey, “Clay-water relationships and the internal mechanism of drying,” *Transactions of the British Ceramic Society*, vol. 41, pp. 73–121, 1942.
- [29] F. Moore, “The mechanism of moisture movement in clays with particular reference to drying—a concise review,” *Transactions of the British Ceramic Society*, vol. 60, pp. 517–539, 1961.
- [30] M. U. T. S. U. M. I. Suzuki and S. I. R. O. Maeda, “On the mechanism of drying of granular beds: mass transfer from discontinuous source,” *Journal of Chemical Engineering of Japan*, vol. 1, no. 1, pp. 26–31, 1968.
- [31] W. D. Kingery and J. Francl, “Fundamental study of clay: xiii, drying behavior and plastic properties,” *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 37, no. 12, pp. 596–602, Dec. 1954. [Online]. Available: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1954.tb13994.x>.
- [32] M. Kornmann, “Complementary explanation of the bigot’ curve,” pp. 44–53, Mar. 2006.
- [33] E. Mancuhan, S. Özen, P. Sayan, and S. Sargut, “Experimental investigation of green brick shrinkage behavior with bigot’s curves,” *Drying Technology*, vol. 34, pp. 1535–1545, Oct. 2016.
- [34] U. Telljohann, K. Junge, and E. Specht, “Moisture diffusion coefficients for modeling the first and second drying sections of green bricks,” *Drying Technology - DRY TECHNOLOGY*, vol. 26, pp. 855–863, Jul. 2008.
- [35] M. Vasić, Ž. Grbavčić, and Z. Radojević, “Determination of the moisture diffusivity coefficient and mathematical modeling of drying,” *Chemical Engineering and Pro-*

- cessing: *Process Intensification*, vol. 76, pp. 33–44, Feb. 2014. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0255270113002791>.
- [36] A. Zanden and M. Wit, “A procedure to measure the diffusion coefficient of water in brick as a function of the water concentration,” *Drying Technology*, vol. 30, pp. 526–534, Apr. 2012.
- [37] Y.-L. Yang and T. Zhang, “Effects of water intrusion on thermal conductivity and durability of carbonaceous rocks,” *Soils and Foundations*, vol. 62, no. 1, p. 101 102, Feb. 2022. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S003808062100175X>.
- [38] S. Yoon and G.-Y. Kim, “Measuring thermal conductivity and water suction for variably saturated bentonite,” *Nuclear Engineering and Technology*, vol. 53, no. 3, pp. 1041–1048, Mar. 2021. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1738573320308536>.
- [39] B. Nait-Ali, C. Danglade, D. Smith, and K. Haberko, “Effect of humidity on the thermal conductivity of porous zirconia ceramics,” *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 33, pp. 2565–2571, Nov. 2013.
- [40] F. Tong, L. Jing, and R. W. Zimmerman, “An effective thermal conductivity model of geological porous media for coupled thermo-hydro-mechanical systems with multiphase flow,” *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, vol. 46, no. 8, pp. 1358–1369, Dec. 2009. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1365160909000756>.
- [41] B. Nait-Ali, S. Oummadi, E. Portuguez, A. Alzina, and D. S. Smith, “Thermal conductivity of ceramic green bodies during drying,” *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 37, no. 4, pp. 1839–1846, Apr. 2017. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S095522191630663X>.
- [42] K. Smits, T. Sakaki, A. Limswat, and T. Illangasekare, “Thermal conductivity of sands under varying moisture and porosity in drainage-wetting cycles,” *Vadose Zone Journal - VADOSE ZONE J*, vol. 9, Feb. 2010.
- [43] A. Zocca, P. Colombo, C. Wirth (Cynthia M. Gomes), and J. Günster, “Additive manufacturing of ceramics: issues, potentialities, and opportunities,” *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 98, Jul. 2015.
- [44] L. Wahl, M. Weichelt, and N. Travitzky, “Multi-material printing of reaction bonded carbides by robocasting,” *Additive Manufacturing*, vol. 48, p. 102 427, Dec. 2021. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2214860421005790>.

- [45] M. Mirkhalaf, Y. Men, R. Wang, Y. No, and H. Zreiqat, "Personalized 3d printed bone scaffolds: a review," *Acta Biomaterialia*, Apr. 2022. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1742706122002185>.
- [46] J. S. Reed, *Principles of Ceramics Processing*. John Wiley & Sons, Inc, 1995.
- [47] G. B. Jeffery and L. N. G. Filon, "The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid," *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, vol. 102, no. 715, pp. 161–179, 1922. eprint: <https://royalsocietypublishing.org/doi/pdf/10.1098/rspa.1922.0078>. [Online]. Available: <https://royalsocietypublishing.org/doi/abs/10.1098/rspa.1922.0078>.
- [48] B. Dietemann, L. Wahl, N. Travitzky, H. Kruggel-Emden, T. Kraft, and C. Bierwisch, "Reorientation of suspended ceramic particles in robocasted green filaments during drying," eng, *Materials (Basel, Switzerland)*, vol. 15, 6 Mar. 2022.
- [49] E. Feilden, C. Ferraro, Q. Zhang, *et al.*, "3d printing bioinspired ceramic composites," *Scientific Reports*, vol. 7, no. 1, p. 13 759, Oct. 2017. [Online]. Available: <https://doi.org/10.1038/s41598-017-14236-9>.
- [50] T. Sasayama, H. Okamoto, N. Sato, and J. Kawada, "Numerical simulation of plate-like particle orientation in injection molding," *Powder Technology*, vol. 404, p. 117 481, May 2022. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0032591022003758>.
- [51] J. J. Martin, B. E. Fiore, and R. M. Erb, "Designing bioinspired composite reinforcement architectures via 3d magnetic printing," *Nature Communications*, vol. 6, no. 1, p. 8641, Oct. 2015. [Online]. Available: <https://doi.org/10.1038/ncomms9641>.
- [52] S. OUMMADI, B. Nait-Ali, A. Alzina, *et al.*, "Distribution of water in ceramic green bodies during drying," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 39, no. 10, pp. 3164–3172, Aug. 2019. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0955221919302298>.
- [53] A. L. Arvanitidis, A. Kothalis, D. Konstantinidis, M. Kostoglou, and M. C. Georgiadis, "A model based study of the drying and shrinkage behavior of a ceramic green body," *Drying Technology*, pp. 1–18, Dec. 2022. [Online]. Available: <https://doi.org/10.1080/07373937.2022.2153135>.
- [54] K. Bathe, *Finite Element Procedures*. Prentice Hall, 2006. [Online]. Available: <https://books.google.fr/books?id=rWvefGICf08C>.
- [55] S. Léger, "Méthode lagrangienne actualisée pour des problèmes hyperélastiques en très grandes déformations," Ph.D. dissertation, Université Laval, 2014.

- [56] A. Chateauneuf, “La méthode des éléments finis - calcul non-linéaire géométrique,” *Techniques de l'ingénieur*, 2016.
- [57] I. Koptug, “Mri of mass transport in porous media: drying and sorption processes,” *Progress in nuclear magnetic resonance spectroscopy*, vol. 65, pp. 1–65, Aug. 2012.
- [58] C. R. Oswin, “The kinetics of package life. iii. the isotherm,” *J. Chem. Technol. Biotechnol.*, vol. 65, no. 12, pp. 419–421, Dec. 1946. [Online]. Available: <https://doi.org/10.1002/jctb.5000651216>.
- [59] S. B. Lakhal, G. Lecomte-Nana, B. Nait-Ali, H. Lemerrier, and D. Smith, “A method for estimating the specific heat capacity of a raw clay mixture,” *ZI, Ziegelindustrie International/Brick and Tile Industry International*, pp. 27–35, Jan. 2014.
- [60] S. Oummadi, B. Nait-Ali, A. Alzina, M.-C. Paya, J.-M. Gaillard, and D. S. Smith, “Optical method for evaluation of shrinkage in two dimensions during drying of ceramic green bodies,” *Open Ceramics*, vol. 2, p. 100 016, Jul. 2020. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S266653952030016X>.
- [61] J. O. H. N. CANNY, “A computational approach to edge detection,” in *Readings in Computer Vision*, M. A. Fischler and O. Firschein, Eds., San Francisco (CA): Morgan Kaufmann, Jan. 1987, pp. 184–203. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780080515816500246>.
- [62] E. Portuguez, “Gouttes millimétriques d'eau en milieu confiné : comportement au cours du séchage,” Ph.D. dissertation, 2016. [Online]. Available: <http://www.theses.fr/2016LIM00130/document>.
- [63] A. L. Samuel, “Some studies in machine learning using the game of checkers,” *IBM Journal of Research and Development*, vol. 44, no. 1.2, pp. 206–226, 1959.
- [64] A. Géron, *Hands-On Machine Learning with Scikit-Learn, Keras, and TensorFlow: Concepts, Tools, and Techniques to Build Intelligent Systems*. O'Reilly Media, 2019. [Online]. Available: <https://books.google.fr/books?id=HHetDwAAQBAJ>.
- [65] W. S. McCulloch and W. Pitts, “A logical calculus of the ideas immanent in nervous activity,” *The bulletin of mathematical biophysics*, vol. 5, no. 4, pp. 115–133, Dec. 1943. [Online]. Available: <https://doi.org/10.1007/BF02478259>.
- [66] K. Fukushima, “Neocognitron: a self-organizing neural network model for a mechanism of pattern recognition unaffected by shift in position,” *Biological Cybernetics*, vol. 36, no. 4, pp. 193–202, Apr. 1980. [Online]. Available: <https://doi.org/10.1007/BF00344251>.

- [67] Y. Lecun, L. Bottou, Y. Bengio, and P. Haffner, "Gradient-based learning applied to document recognition," *Proceedings of the IEEE*, vol. 86, pp. 2278–2324, Dec. 1998.
- [68] C. e. a. F., *Keras*, <https://keras.io>, 2015.

Liste des Travaux

- [1] N. Lauro, S. Oummadi, A. Alzina, B. Nait-Ali, and D. S. Smith, “Computer model of drying behaviour of ceramic green bodies with particular reference to moisture content dependent properties,” *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 41, no. 14, pp. 7321–7329, Nov. 2021. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0955221921005124>.

Caractérisation et modélisation des retraits de séchage dans le procédé de microextrusion d'une pâte céramique

Résumé : La microextrusion est une technique de fabrication additive basée sur l'extrusion d'une pâte céramique. Lors de la fabrication, le séchage qui s'opère s'accompagne de retraits dimensionnels qui peuvent être à l'origine de défauts comme des déformations ou des fissures. Un modèle multiphysique par éléments finis du séchage prenant en compte le retrait a été développé et permet d'obtenir des prédictions réalistes du séchage de produits céramiques. Des méthodes optiques de suivi du retrait ont été développées, permettant d'étudier le séchage de produits obtenus par microextrusion à différentes échelles (d'un cordon extrudé à l'échelle d'une pièce). Une anisotropie du retrait de séchage dans les produits a été mise en évidence, et plusieurs causes ont été identifiées. Enfin, une méthode de suivi en temps réel du retrait a été proposée, offrant ainsi la possibilité de contrôler le séchage de manière à réduire l'apparition de défauts. Une preuve du concept de l'utilisation du machine learning pour l'identification de la fin du retrait est présentée, montrant ainsi le potentiel de ces nouvelles technologies sur ce champs d'applications.

Mots clés : Céramique, Simulation, Séchage, Computer vision, Retrait, Robocasting

Characterization and modelling of drying shrinkage in the process of microextrusion of a ceramic paste

Abstract: Microextrusion is an additive manufacturing technique for complex shaped objects. After extrusion of a ceramic paste drying involves dimensional shrinkage that can be the cause of defects such as deformations or cracks. A finite element multiphysics model of drying taking into account shrinkage has been developed to predict the behaviour of the ceramic product. Optical methods for monitoring shrinkage have been developed, making it possible to study the drying of products obtained by microextrusion at different scales (from an extruded cord to the scale of a full product). Anisotropy of drying shrinkage in products has been demonstrated, and several causes have been identified. Finally, a real-time shrinkage monitoring method has been proposed, thus offering the possibility of controlling the drying for optimisation while avoiding conditions yielding defects. A proof of concept of the use of machine learning for the identification of the end of shrinkage is presented, thus showing the potential of new technologies in industrial application.

Keywords: Ceramics, Simulation, Drying, Computer vision, Shrinkage, Robocasting