Comportement thermo-hygrique de blankets aérogels de silice et applications à l'isolation des bâtiments

Kévin Nocentini

▶ **To cite this version:**

Kévin Nocentini. Comportement thermo-hygrique de blankets aérogels de silice et applications à l'isolation des bâtiments. Matériaux. Université Paris sciences et lettres, 2018. Français. NNT : 2018PSLEM049 . tel-02413152

HAL Id: tel-02413152
https://pastel.hal.science/tel-02413152

Submitted on 16 Dec 2019

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.

THÈSE DE DOCTORAT

de l'Université de recherche Paris Sciences et Lettres
PSL Research University

Préparée à MINES ParisTech

Comportement thermo-hygrique de blankets aérogels de silice et applications à l'isolation des bâtiments

Ecole doctorale n°432

SMI – SCIENCES DES METIERS DE L'INGENIEUR

Spécialité ENERGETIQUE ET PROCEDES

COMPOSITION DU JURY :

M. Etienne WURTZ
Directeur de Recherches CNRS
CEA-INES, Président du jury

Mme Geneviève FORAY
Maître de Conférence,
MATEIS-INSA Lyon, Rapporteur

Mme Monika WOLOSZYN
Professeur des Universités
Université de Savoie, Rapporteur

M. Arnaud RIGACCI
Professeur
PERSEE – MINES ParisTech, Examinateur

M. Patrick ACHARD
Directeur de recherche
PERSEE – MINES ParisTech, Examinateur

M. Pascal Henry BIWOLE
Professeur des Universités
Université Clermont Auvergne, Examinateur

Soutenue par Kévin Nocentini
le 14 décembre 2018

Dirigée par **Patrick ACHARD**
Pascal Henry BIWOLE

MINES ParisTech | PSL

Remerciements

Mes premiers remerciements vont à mes directeurs de thèse, Patrick Achard et Pascal Biwolé. Tout d'abord pour m'avoir donné l'opportunité d'effectuer cette thèse sur un sujet fort intéressant, et dans un cadre de travail très agréable. Ensuite, de m'avoir fait confiance tout au long de la thèse et de m'avoir tant appris sur le plan intellectuel et professionnel. Je tiens à souligner vos qualités humaines, et votre encadrement irréprochable qui ont contribué au succès de la thèse.

Je souhaite remercier les membres du jury d'avoir accepté de prendre du temps pour lire mon travail. En particulier, les deux rapporteurs, Geneviève Foray et Monika Woloszyn qui ont eu la lourde tâche de lire attentivement ce copieux manuscrit et d'en faire un retour constructif. Je remercie également les autres membres du jury, Étienne Wurtz, David Lesueur et Arnaud Rigacci pour leurs remarques pertinentes, leurs conseils et leurs apports directs ou indirects sur mes travaux de thèse.

Je remercie également l'ensemble des partenaires du projet HOMESKIN, qui m'ont apporté énormément d'expérience et de compétences, utiles dans le monde professionnel. Je garde de bons souvenirs de chacune des réunions de projet partout en Europe, dans lesquelles travail, bonne humeur (et parfois loisirs) étaient présent. Un grand merci donc aux partenaires de projet : Enersens, USTUTT, ITEc, Trocellen, PAREX, FLAG, le CEA, SORANE et Kurt Salmon. En particulier, je remercie Enersens pour nos multiples échanges tout au long de la thèse et l'équipe de Trocellen, qui est venue installer l'isolation thermique pour notre cellule test avec beaucoup de réactivité et de professionnalisme.

Merci également à l'ensemble du personnel du centre PERSEE et CEMEF, qui ont facilité mes travaux de recherches. Je remercie Arnaud Rigacci pour nos discussions scientifiques, et ses grandes qualités de directeur de centre. Merci à Patrick Leroux et Cédric Sernissi qui m'ont été d'une grande aide pour l'instrumentation de la cellule test et l'acquisition des données tout au long de la thèse. Merci à Pierre Ilbizian pour sa présence et son aide au laboratoire PERSEE lors de ces trois années de thèse, et merci à Suzanne Jacomet pour son aide au MEB et sa patience.

Enfin, je remercie mes collègues doctorants PERSEE qui m'ont donné envie de me lever tous les matins (mais pas avant 9h quand même) pour venir travailler : Pedro pour sa culture et ses conseils, qui continue de nous apprendre des choses sur notre propre pays, Alexis pour son expertise en meme, Shalotte pour sa bonne humeur et ses gâteaux, Antoine et sa persévérance à supporter le Stade Rennais malgré toute la déception que cela occasionne. Merci également à tous les autres doctorants : tonton Simon, Pacco, Thomas, stagiaire Baptiste, Youling, Lucia,

Fabien, Lucile, Sophie, ɳ, Romain, Xwégnon, Adrian, Thomas H, Di, Fian/Renaud, Valentin, Aravind, Kévin II, Lluis, Mr Woo, Youssef, Alberto, Papa, Momo, Gedged, Giogio, Stan, Jean Guy, Guillaume, Maxime, Enoraton, ainsi que tous ceux que j'oublie.

Une dernière pensée va à ma famille, qui me soutient depuis toujours, et qui a toujours été là pour moi, dans les bons moments comme dans les mauvais.

Résumé

Comportement thermo-hygrique de blankets aérogels de silice et applications à l'isolation des bâtiments

En Europe, le secteur du bâtiment est le plus énergivore et représente environ 40 % de l'énergie totale consommée. À court terme, la façon la plus efficace de baisser cette consommation est de réduire les déperditions thermiques à travers l'enveloppe du bâtiment en augmentant son isolation thermique. Les réglementations thermiques actuelles et futures étant de plus en plus strictes, l'épaisseur d'isolant nécessaire pour respecter ces dernières augmente, empiétant sur la surface habitable.

Dans ce contexte, les travaux de thèse portent sur l'étude et la mise au point pour préindustrialisation de matériaux super-isolants composites à base d'aérogel de silice. Le matériau composite étudié fait partie de la famille des *blankets* aérogels et est obtenu via un procédé de séchage ambiant innovant. Grâce à leur faible conductivité thermique – $0{,}015\ W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ – et leurs propriétés mécaniques renforcées, les *blankets* aérogels sont d'un grand intérêt pour l'isolation thermique qui nécessite de fines épaisseurs d'isolants.

Les travaux de thèse visent dans un premier temps à effectuer une analyse des propriétés thermo-physiques des *blankets* aérogels étudiés à la sortie du moule de fabrication et vis-à-vis de leur mise en œuvre lorsqu'ils sont soumis à différentes sollicitations (mécaniques, hygriques...). Des travaux de modélisation du transfert de chaleur dans le *blanket* aérogel sont développés afin d'étudier les relations entre le transfert thermique et les paramètres morphologiques du matériau. Dans un second temps, les travaux de thèse portent sur l'étude des performances à attendre d'un système d'isolation basé sur le *blanket* aérogel mis en œuvre sur un bâtiment, à la fois par l'analyse du comportement thermique d'une cellule test en climat réel, ainsi que par la conduite de simulations numériques de bâtiments prenant en compte plusieurs techniques constructives, configurations de murs, et ce, pour plusieurs climats européens.

Les résultats obtenus lors de la thèse mettent en évidence un *blanket* aérogel aux propriétés thermiques et hygriques intéressantes, avec une certaine macro-fléxibilité grâce à la présence du mat fibreux. Les caractéristiques générales des *blankets* aérogels étudiés sont semblables à celles des *blankets* aérogels du benchmark, séchés par la voie super-critique. Les modèles analytiques de transfert thermique du *blanket* aérogel ont permis de faire le lien entre les paramètres morphologiques du matériau (densité, taille de pores, fraction fibreuse) et la conductivité thermique effective du matériau, et également d'étudier l'influence de l'environnement extérieur (humidité, température, pression). Des mesures *in situ* dans une cellule test ont permis de caractériser un système d'isolation intérieur basé sur le *blanket* aérogel en conditions climatiques réelles. Sa résistance thermique a été calculée via des méthodes dynamiques et a été évaluée à $1{,}5\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$, pour une épaisseur d'isolant d'environ 2,5 cm. Enfin, les simulations numériques ont pu montrer que la rénovation thermique de bâtiments mal isolés par des *blankets* aérogels réduisait la consommation en chauffage de manière conséquente, pour tous les climats européens.

Abstract

Thermo-hygric behavior of silica aerogel blankets and applications to building insulation

Buildings are the largest energy end-use sector and account for about 40 % of the total final energy consumption in the EU-28. A short-term strategy to efficiently reduce this consumption is to decrease thermal losses through the building envelope by increasing its thermal insulation. As current and future thermal regulations become more stringent, an increased insulation thickness is required to meet the latter regulations, with the negative side effect of reducing the available indoor living space.

In this context, the thesis deals with the study and development for pre-industrialization of super-insulating composite materials based on silica aerogel. The studied material is part of the aerogel blanket family and is obtained by an innovative ambient drying process. With a thermal conductivity as low as 0.015 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ and reinforced mechanical properties, aerogel blankets are of great interest for applications where they can offer a cost advantage due to a space-saving effect.

Firstly, the thesis work aims at performing analyses of the thermo-physical properties of the studied aerogel blankets at the exit of the molding and drying processes, and during application, when they are subjected to different environmental stresses (mechanical, hygric …). Heat transfer modeling is developed to study the relationship between the morphological parameters of the material and thermal transfer within it. Secondly, the thesis work focuses on the study of the expected performances of an insulating system based on the aerogel blanket, by the study of the thermal behavior of an experimental building monitored under actual climate, as well as the use of whole building energy numerical simulations taking into account several constructive techniques, different wall configurations, for various European climates.

The results obtained during the thesis reveal an aerogel blanket with promising thermal and hygric properties, with a macro-flexibility due to the fibrous mat. The general thermo-physical properties of the aerogel blankets studied are similar to those of the benchmark products, made via the supercritical route. The heat transfer analytical models make the link between the morphological parameters of the material (density, pore size, fibrous fraction) and the effective thermal conductivity of the material, and allow studying the influence of the external environment (humidity, temperature, pressure). In-situ measurements were done to characterize an indoor insulation system based on the aerogel blanket. Its thermal resistance was calculated using dynamical models and was evaluated to 1.5 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$, for only 2.5 cm of superinsulating material. Lastly, numerical simulations have shown that the thermal renovation of poorly insulated buildings with aerogel blankets significantly reduces the heating consumption for all European climates.

Sommaire général

Remerciements i
Résumé iii
Abstract v
Sommaire général vi
Table des figures viii
Table des tableaux xx
Nomenclature xxii
Abréviations xxv

Introduction générale 1
I.État de l'art 5

Table des matières 6
I.1 Contexte énergétique actuel dans le domaine du bâtiment 9
I.2 Échanges de chaleur entre un bâtiment et son environnement 12
I.3 L'isolation thermique dans le bâtiment 19
I.4 Les aérogels de silice 33
I.5 Les transferts de chaleur dans les aérogels de silice 50
I.6 Conclusions sur l'état de l'art 69

II.Caractérisation expérimentale des *blankets* aérogels de silice 79

Table des matières 80
II.1 Présentation des blankets aérogels étudiés 85
II.2 Méthodes expérimentales et protocoles de mesure 88
II.3 Résultats de caractérisation et discussions 125
II.4 Conclusions sur les caractérisations physiques 172

III.Modèles de transfert thermique dans les *blankets* aérogels de silice 179

Table des matières 180
III.1 Construction du modèle thermique des blankets 185
III.2 Conductivité thermique du squelette de silice 186
III.3 Conductivité thermique gazeuse du réseau de pores 190
III.4 Conductivité thermique gazeuse des fissures 195
III.5 Conductivité thermique de conduction du blanket 199
III.6 Conductivité radiative 204
III.7 Conductivité thermique effective 211
III.8 Conductivité thermique du blanket humide 215
III.9 Conclusion 216

IV.Expérimentation à l'échelle du système 219

Table des matières 220
IV.1 Description du système d'isolation et de la cellule test 223
IV.2 Méthodologie de la campagne de mesure 232
IV.3 Méthodes pour l'estimation des paramètres caractéristiques d'une cellule test 240
IV.4 Résultats expérimentaux de la campagne de mesures 250
IV.5 Conclusion 264

V.Simulations numériques à l'échelle du système et du bâtiment 269

Table des matières 270
V.1 Modélisation numérique 1 D pour le calcul du déphasage, du facteur d'amortissement et de l'épaisseur économique 273
V.2 Étude hygrique avec WUFI 285
V.3 Étude énergétique globale avec Energy Plus 299
V.4 Conclusion 314

Conclusions générales et perspectives 317

Contributions et résultats principaux 319
Perspectives 322

Annexes 325

Table des matières 326
Annexe 1 : Complément des caractérisations en laboratoire 327
Annexe 2 : Propriétés du système Trocellen 330
Annexe 3 : Caractéristique de la cellule test 332
Annexe 4 : Résultats de mesure d'infiltration d'air dans la cellule test 334
Annexe 5 : Introduction aux séries temporelles 336
Annexe 6: Méthodes d'estimation de paramètres 337
Annexe 7 : Validation des modèles 'state-space' modélisés sous Ctsm-R 340
Annexe 8 : Systèmes d'isolation ETICS et FLAG 342
Annexe 9 : Scénarios utilisés pour les simulations avec Energy Plus 344

Table des figures

Figure I.1-1 : État de la consommation énergétique française des bâtiments existants [3] 10
Figure I.1-2 :Évolution des exigences réglementaires de consommation énergétique des bâtiments neufs [2] 11
Figure I.2-1 : Relation entre le PPD et le PMV 17
Figure I.2-2 : Plage de confort optimale selon la norme EN-15251, les teintes de verts correspondent à des sous-plages de confort. 17
Figure I.2-3: Plage de confort adaptative selon la norme EN-15251 18
Figure I.3-1 : Coût d'investissement de l'isolant et coût d'exploitation en fonction de l'épaisseur de l'isolant 21
Figure I.3-2 : Effet de la position de l'isolant sur les ponts thermiques.....22
Figure I.3-3 : Déphasage et facteur d'amortissement d'un mur.....23
Figure I.3-4 : Chaine de l'énergie.....27
Figure I.3-5 : Mousse de polyuréthane (gauche) et mousse de polystyrène expansé (droite).....27
Figure I.3-6 : Laine de verre (gauche) et verre cellulaire (droite).....28
Figure I.3-7 : Panneaux de cellulose (gauche) et laine de lin en rouleaux (droite) 28
Figure I.3-8 : Épaisseur d'isolant nécessaire pour atteindre une résistance thermique de 4 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$, requise en France pour atteindre les bâtiments basses consommations selon la RT 2012. 30
Figure I.3-9 : Panneaux d'isolation sous vide [24] 31
Figure I.3-10 : Conductivité thermique des PIV au cours du temps, (MF : Multilayer Foil, AF = Aluminium Foil) [25].....31
Figure I.4-1: Structure poreuse d'un aérogel de silice.....33
Figure I.4-2: Apparence d'un xérogel de silice après séchage ambiant (gauche) et d'un aérogel de silice après séchage supercritique (droite). Laboratoire PERSEE, Mines ParisTech. 34
Figure I.4-3: Publicité pour Santocel, un produit de Monsanto basé sur les aérogels (1941) 34
Figure I.4-4: Réactions principales lors de la formation du gel de silice suivant la méthode *waterglass*.....38
Figure I.4-5: Réactions principales lors de la formation du gel de silice suivant la méthode alkoxyde 39
Figure I.4-6 : a) Effet du temps de vieillissement sur la densité finale du matériau (voie silicate de sodium), b) Effet du ratio molaire précurseurs/eau sur la densité finale du matériau et le temps de transition sol-gel (voie silicate de sodium), c) Effet du temps de vieillissement sur le module de cisaillement (voie alkoxyde),d) Effet du temps de vieillissement sur la limite à la rupture en flexion (voie alkoxyde), [44].....40
Figure I.4-7 : Réaction de silylation entre l'agent hydrophobant HDMS et un groupe silanol en surface du gel de silice.....41
Figure I.4-8: Pression capillaire dans un pore à l'interface liquide/vapeur.....42

TABLE DES FIGURES

Figure I.4-9: Diagramme de phase d'un solvant quelconque 43
Figure I.4-10 : Illustration des étapes de synthèse d'un aérogel de silice.....44
Figure I.4-11: Monolithe d'aérogel de silice utilisé en tant que vitrage, Centre PERSEE , Mines ParisTech 45
Figure I.4-12: Granules d'aérogel fabriqué par la société ENERSENS - produit Kwark ® 46
Figure I.4-13: Principe de fabrication d'un *blanket* aérogel (gauche), *blanket* aérogel Spaceloft® commercialisé par Aspen obtenue par séchage supercritique (droite) 47
Figure I.4-14 : a) Aérogel Ormosil à base de MTMS, b) Aérogel à base de réseau de silice et de cellulose interpénétrés, c) Aérogel organique à base de polyimide « crosslinked » avec un composé triamine aromatique, d) Aérogel Ormosil « crosslinked » avec un composé d'isocyanate 48
Figure I.5-1: Mécanismes de transfert de chaleur dans un aérogel de silice, qr représente le flux radiatif, qcg le flux par conduction gazeuse, qcs le flux par conduction solide. q est le flux thermique total égal à la somme des trois précédents dans le cas d'un aérogel optiquement épais. 51
Figure I.5-2: Influence de l'effet de taille sur le transfert de chaleur dans le squelette solide de silice (gauche), dans le réseau poreux (droite). dp : diamètre des particules, D : diamètre de pore. 52
Figure I.5-3: a) Contribution des résistances thermiques dans le squelette de silice pour une surface de contact entre nanoparticules égale 0,5 d'après le modèle de Chen [68]. Λ_V représente la contribution à la résistance propre du matériau (phénomènes d'autodiffusion des phonons), Λ_B la contribution à la résistance par effets de bord et Λ_T la contribution à la résistance par contact entre nanoparticules. 52
Figure I.5-4 : Transfert thermique par conduction solide et gazeuse dans un aérogel de silice entre deux isothermes T+dt et T en négligeant le couplage. Le flux thermique par conduction solide $\mathbf{\Phi}$s passe à travers le squelette de silice connecté (rouge). Le flux thermique par conduction gazeuse $\mathbf{\Phi g}$ passe par la porosité ouverte (vert). Si l'on néglige le couplage, il n'y a pas d'interaction entre $\mathbf{\Phi}$s et $\mathbf{\Phi}$g. 53
Figure I.5-5 : Illustration du phénomène de couplage entre deux nanoparticules non connectées. Si $R_{AB}<R_{AC}$ alors le flux thermique passe par le chemin AB à travers la phase gazeuse et « active » la masse non connectée. Le flux thermique transmis par cette zone de couplage est appelé $\mathbf{\Phi}$c 54
Figure I.5-6: Illustration du phénomène de couplage sur des parties entières du réseau de silice 54
Figure I.5-7: Effet de couplage entre deux nanoparticules de silice en contact 54
Figure I.5-8: Conductance thermique mesurée pour un aérogel de silice (50 $kg \cdot m^{-3}$; 6,7 mm) en fonction de la température au cube. Le test a été fait sous deux atmosphères différentes et deux conditions limites différentes (émissivité des plaques de 0.04 et 0.74),[70]. 56

Figure I.5-9: Extinction effective spécifique d'aérogel de silice optiquement fin (silice pure) et optiquement épais (silice opacifiée, carbone, RF). La fonction de Rosseland normalisée à 300 K est également montrée [72].....57
Figure I.5-10: Conductivité thermique mesurée pour différentes humidités relatives et différentes températures pour un cœur de PIV en silice pyrogénée [75].....58
Figure I.5-11: (**a**) Conductivité thermique totale d'un aérogel RF en fonction de la pression, dans l'argon [89]. (**b**) Conductivité thermique d'un aérogel de carbone et d'un aérogel de résorcinol-formaldéhyde dans l'argon en fonction de la pression [90] (**c**) Contribution du transfert thermique gazeux d'un aérogel de carbone en fonction de la taille de pores dans l'argon. [91]. Les points sont issus de mesures expérimentales en laser flash et les traits pleins et pointillés correspondent à la prédiction faite à partir du modèle de Zeng (a) ou Knuden (b) et (c).....62
Figure I.5-12:Transport gazeux dans un pore a) Modèle de Kaganer, b) Modèle de Zeng, c) Structure réelle et effet de couplage.....63
Figure I.5-13: Cylindre unitaire dans le modèle de Swimm et al. pour le calcul du couplage solide-gaz.....63
Figure I.5-14: Influence des fibres sur la conduction solide du *blanket*.....67
Figure I.5-15: Influence des fibres sur la conductivité thermique d'un matériau composite d'après plusieurs modèles de la littérature. Les courbes ont été tracées pour un aérogel de silice de conductivité thermique 0,015 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ et des fibres de verre perpendiculaires au flux de chaleur. L'influence des fibres sur le transfert radiatif est ici négligée.....68
Figure II.1-1: Principaux b*lankets* aérogels étudiés dans le cadre de la thèse : à base de fibres de verre (gauche), de fibres de PET (milieu), de fibres de verre aiguilletées (droite).....87
Figure II.2-1: Tensor 27 pour l'analyse par spectroscopie infrarouge, PERSEE, Mines ParisTech.....89
Figure II.2-2: Interaction matière-rayonnement lors d'une mesure FTIR en transmission. **u** représente l'ensemble des directions qui pointent vers le détecteur.....90
Figure II.2-3: Principe de la mesure ATR. (1) représente le cristal ATR, (2) représente l'échantillon.....91
Figure II.2-4 : Schéma d'un grain poreux.....92
Figure II.2-5: Irrégularités en surface de l'échantillon.....94
Figure II.2-6: Pycnomètre à poudre GéoPyc pour l'analyse de densité, PERSEE, Mines ParisTech.....94
Figure II.2-7: Principe de mesure d'un microscope électronique à balayage.....96
Figure II.2-8: MEB Philips XL30 (gauche), MEB FEG Supra 40 Zeiss (droite) au centre CEMEF, Mines ParisTech.....97
Figure II.2-9: Micro tomographe X GE Phoenix v|tome|x s pour l'analyse tomographique aux rayons X, centre MATEIS, INSA Lyon.....98
Figure II.2-10: Classification des isothermes de sorption d'après l'IUPAC.....99

Figure II.2-11: (gauche) : Trois isothermes provenant du même échantillon d'aérogel de silice pour des temps d'équilibre différents. Les temps indiqués sur la figure correspondent à la durée totale de la mesure. (droite) : Correction de l'isotherme de sorption d'un aérogel de silice contracté d'après [6]. En bleu : l'isotherme expérimentale, en rouge : l'isotherme corrigée 101
Figure II.2-12: Effet de contraction de l'aérogel pendant l'isotherme de sorption. Les modules de compression des aérogels B et C sont respectivement 3,4 MPa et 10,2 MPa [10] 103
Figure II.2-13: Distribution de taille de pores d'une zéolite à partir de l'analyse de la branche de désorption (carré noir), et de la branche d'adsorption (carré blanc) [11] 104
Figure II.2-14: Effet du réseau de pores sur la sorption/désorption 105
Figure II.2-15: Appareil ASAP 2020 pour l'analyse texturale par sorption d'azote, centre CEMEF, Mines ParisTech 105
Figure II.2-16: Principe de mesure de conductivité thermique par méthode fluxmétrique. Le flux thermique q utilisé dans l'équation (II.21) est la moyenne de qc et qf.....108
Figure II.2-17 : Appareil FOX 150 pour la mesure de conductivité thermique, centre PERSEE, Mines ParisTech. L'appareillage dispose également d'une option de mesure sous vide grâce à la pompe et la chambre sous vide que l'on voit sur la figure. 109
Figure II.2-18: Dispositif microfluxmètre pour la mesure de conductivité thermique de petits échantillons, centre PERSEE, Mines ParisTech. L'échantillon est au centre des plaques en aluminium entouré par une garde isolante, puis le tout en inséré dans le FOX 150. 111
Figure II.2-19: Variation du flux thermique en fonction du temps lors de la mesure de conductivité thermique d'un matériau humide.....111
Figure II.2-20: Dispersion des valeurs de $\lambda H*/\lambda \mathrm{sec}$ en fonction de la teneur en eau volumique pour une vermiculite (gauche) et une laine de verre (droite) 112
Figure II.2-21 : DSC 8000 pour la mesure de chaleur spécifique au centre CEMEF (Mines ParisTech).....113
Figure II.2-22 : Mécanisme de fixation des molécules d'eau dans un matériau poreux.....114
Figure II.2-23: Isotherme de sorption d'eau pour un matériau poreux fictif 115
Figure II.2-24: Enceinte climatique Binder pour les mesures de reprise hydrique, centre PERSEE, Mines ParisTech 116
Figure II.2-25: Angle de contact d'une goutte d'eau avec une surface hydrophile et une surface hydrophobe 117
Figure II.2-26: Goniomètre KRUSS DSA 10 au centre CEMEF, Mines ParisTech.....117
Figure II.2-27 : Dispositif d'essai pour la mesure des propriétés de transmission de vapeur d'eau 119
Figure II.2-28 : Machine à traction-compression ZwickiLine Z2.5 (ZwickRoell) au centre CEMEF, Mines ParisTech pour la réalisation des essais mécaniques 120
Figure II.2-29: Courbe force-déplacement d'un essai en compression uniaxiale.....121
Figure II.2-30: Flexion trois points d'un matériau et courbe force-déplacement 122
Figure II.2-31: Principe de l'essai de traction sur un isolant.....124

Figure II.3-1: Spectre FTIR d'un aérogel hydrophobé (bleu) et d'un aérogel non hydrophobé (rouge)....126
Figure II.3-2: Modes de vibration observés sur les spectres d'aérogel de silice, ν : élongation, ν_s élongation symétrique ν_{as} élongation antisymétrique, δ déformation δ_s cisaillement symétrique ν_p élongation dans le plan, ρ rotation. 127
Figure II.3-3: Pics d'absorption IR en unité ATR d'un aérogel sans hydrophobant et d'un aérogel avec hydrophobant....128
Figure II.3-4: Spectres EDX d'un aérogel de silice natif obtenu par voie alkoxyde (gauche) ou par voie *waterglass* (droite)....129
Figure II.3-5: Mécanisme de retrait/expansion selon la méthode d'imprégnation employée 133
Figure II.3-6: Micrographies MEB des laines utilisées pour la fabrication des *blankets*. a) Laine GF, b) Laine NGF, c) Laine PET, d) Laine PET (grossissement X400). 134
Figure II.3-7: Micrographie MEB des *blankets* aérogels. a) *Blanket* GF, b) *Blanket* NGF, c) *Blanket* PET, d) *Blanket* NGF (SUPRA 40)....135
Figure II.3-8: Micrographie MEB Supra de la phase aérogel de silice des *blankets* étudiés 136
Figure II.3-9: Cliché tomographique d'une coupe de *blanket* NGF (1.25mm x 1.25 mm), les macropores sont accentués en rouge....137
Figure II.3-10: a) Vue 3 D du réseau fibreux du *blanket* NGF(1,25mm x 1,25 mm x 1,25 mm), b) Vue 3 D du réseau macroporeux du *blanket* NGF, c) Vue orthocoupe du blanket *NGF*, d) Vue 3 D du *blanket* NGF. 138
Figure II.3-11: Cliché tomographique d'un échantillon de *blanket* PET fracturé (1,25 mm x 1,25 mm x 1,25mm), on y observe des macrofissures ainsi que des bulles d'air....139
Figure II.3-12: (gauche) Distribution de taille de fibres, (droite) Distribution de largeur de fissure....140
Figure II.3-13 : Surface spécifique des matériaux étudiés à base d'aérogel de silice 141
Figure II.3-14: Isotherme de sorption de la phase aérogel de silice 142
Figure II.3-15 : Variation relative du volume de l'échantillon d'aérogel lors de l'isotherme de sorption. La figure a été tracée pour un module de compression K=3,5 MPa. 143
Figure II.3-16 : (gauche) Volume de pores cumulé lors du cycle sorption/désorption (droite) Distribution de la taille de pores de la phase aérogel de silice. Les variations soudaines du volume incrémental de pores sont attribuées aux effets du réseau de pores discutés dans la partie précédente. 143
Figure II.3-17: Courbe de sorption des *blankets* et des laines à 23 °C....144
Figure II.3-18: Temps de séchage des *blankets* aérogels. La masse d'eau résiduelle au bout de 24h est très proche de celle adsorbée pour des durées supérieures à 72 h. 145
Figure II.3-19 : Angle de contact entre une goutte d'eau et la surface de la laine NGF (gauche), et entre une goutte d'eau et la surface du *blanket blanket* NGF (droite) 147
Figure II.3-20 : Variation de masse de l'ensemble récipient-échantillon 148
Figure II.3-21: Variation de masse surfacique des *blankets* NGF_12mm au cours du temps ..149

Figure II.3-22: Chaleur spécifique de chacune des phases constituants les *blankets* (gauche), et des *blankets* (droite) 150
Figure II.3-23: Conductivité thermique des *blankets* aérogels, mousses et granules en conditions ambiantes (T=23 °C, HR=50%). Les valeurs de conductivité thermique sont données avec une erreur de 5%. * La conductivité thermique du *blanket* Spaceloft est mesurée avec le microfluxmètre, contrairement à tous les autres échantillons (Voir remarque ci-dessous). 152
Figure II.3-24: Influence de l'humidité sur la conductivité thermique des *blankets.* 154
Figure II.3-25: Influence du mode de séchage sur les *blankets* NGF_6mm 156
Figure II.3-26: Préparation du lit granulaire pour la mesure de conductivité thermique 157
Figure II.3-27: Conductivité thermique d'un lit granulaire d'aérogel de silice en fonction de la pression, pour différentes granulométries 158
Figure II.3-28: Conductivité thermique des *blankets* en fonction de la pression. Les courbes théoriques sont tracées à partir du modèle de Kaganer. La masse volumique des NGF est approximativement 200 $kg \cdot m^{-3}$ et celle du PET 100 $kg \cdot m^{-3}$ 159
Figure II.3-29 : Groupes fonctionnels en surface d'un aérogel de silice 161
Figure II.3-30 : Réaction d'hydroxylation de la silice et effet de dissolution reprécipitation « lissant » l'aspect du squelette de silice. 162
Figure II.3-31: Évolution de la conductivité thermique des *blankets* sous ambiance humide (HR = 98%). Au douzième mois, les échantillons sont séchés (T = 70 °C, HR = 10 %) 164
Figure II.3-32:Isotherme de sorption (gauche) et distribution de taille de pores (droite) de la phase aérogel de silice après vieillissement hygrique (conditionnement à 98 % d'humidité relative) 165
Figure II.3-33 : Illustration du vieillissement microstructural de l'aérogel de silice. On peut voir que les pores les plus petits disparaissent (cercle rouge) et que les surfaces de contact inter-particule augmentent suite aux mécanismes de dissolution-reprécipitation. 166
Figure II.3-34 : Essai de compression sur un blanket NGF 167
Figure II.3-35 : Courbes de compression uniaxiale représentative du comportement des NGF_6mm et NGF_20 mm 167
Figure II.3-36: Courbes de mesure de flexion 3 points des *blankets* NGF 168
Figure II.3-37: Flexion 3 points de *blankets* NGF: (gauche) Échantillon de NGF_6mm fléchi à 90°, sans rupture ; (droite) Échantillon de NGF_20mm après flexion, l'échantillon revient à sa position initiale à 5° près 169
Figure II.3-38:Courbe Force-déplacement des *blankets* NGF_20mm, GF et PET lors des essais en tractions perpendiculaires aux faces. NGF_min représente le NGF ayant la plus faible résistance à la traction et NGF_max le NGF ayant la plus grande résistance à la traction. .. 170
Figure II.3-39 : Essais de traction perpendiculaire aux faces de l'isolant au moment de la rupture 170
Figure III.2-1: Géométrie des nanoparticules de silice 187

Figure III.2-2: Conductivité thermique du squelette de l'aérogel de silice (ρ=110 kg · m^{-3}) en fonction du diamètre des nanoparticules de silice à T=300 K. 188
Figure III.2-3: Conductivité thermique du squelette de l'aérogel de silice pour une taille de nanoparticule de 15 nm. (a) En fonction de la densité à T=300 K. Mesures expérimentales de Fricke [8] à T=300 K....189
Figure III.2-4: Conductivité solide du squelette d'un aérogel de silice à partir de modèle empirique. a) En fonction de la densité à T=300 K et mesures expérimentales de Bi et al.[11] à 300 K (b) En fonction de la température à ρ=110 kg · m^{-3}. 189
Figure III.3-1 : Facteur de couplage : (a) En fonction du diamètre des nanoparticules dp (avec D=40 nm et P=1 bar). (b) En fonction du diamètre de pores D (avec dp=15 nm et P=1 bar). (c) En fonction de la pression (avec dp=15 nm et D=40 nm). 192
Figure III.3-2 : Conductivité thermique gazeuse de la phase aérogel obtenue par les modèles de Zeng, Kaganer et le modèle avec le facteur de couplage 193
Figure III.3-3 : Conduction gazeuse d'un matériau poreux quelconque en fonction du diamètre de pores moyen. 194
Figure III.4-1: Identification des paramètres Π, D, F par *fitting* de l'équation de Knusen bimodale avec les données expérimentales (méthode de Nelder-Mead). (a) et (b) : Cas du NGF_6mm, (c) : Cas du NGF_24mm, (d) : Cas du PET 196
Figure III.4-2: Identification des paramètres Π, D, F par *fitting* de l'équation de Knusen trimodale avec les données expérimentales (méthode de Nelder-Mead). (a) et (b) : Cas du NGF_6mm, (c) : Cas du NGF_24mm, (d) : Cas du PET 197
Figure III.5-1: Conductivité thermique de conduction de l'aérogel de silice. (a) En fonction de la densité de l'aérogel à T=300 K et P=1 bar. (b) En fonction de la pression à ρ=110 kg · m^{-3} et T=300 K. (c) En fonction de la température à P=1 bar et ρ=110 kg · m^{-3}....199
Figure III.5-2: Illustration du modèle série et parallèle pour l'homogénéisation d'un matériau composite biphasique. Rf représente la résistance thermique des fibres et Rc,aérogel la résistance thermique de conduction de l'aérogel....201
Figure III.5-3: Modèle de conduction thermique du blanket aérogel 201
Figure III.5-4: Conductivité thermique de conduction du *blanket* à partir du modèle série....202
Figure III.5-5 : Conductivité thermique de conduction d'un *blanket* aérogel en fonction de la fraction volumique de fibres. Les courbes sont tracées pour trois cas : A=0 %, A=5 % et A=10 % 202
Figure III.6-1: Spectre en transmittance entre 1,2 µm et 25 µm (a) : Phase aérogel de silice, (b) Fibres de verre, (c) Fibres de PET 205
Figure III.6-2: Fonction de Rosseland normalisée à 200 K et à 900 K. Elle décrit la répartition spectrale du transfert radiatif à une température donnée d'après la loi de Planck. 206
Figure III.6-3: Extinction effective spécifique de l'aérogel de silice, des fibres de verre et des fibres de PET 206

Figure III.6-4: Coefficient d'extinction moyen de Rosseland des *blankets* en fonction de la température.....208
Figure III.6-5: Conductivité radiative des *blanket* étudiés : (a) en fonction de la densité à T=300 K, (b) en fonction de la température à ρ=110 $kg \cdot m^{-3}$, (c) en fonction de la fraction volumique de fibres à T=300 K et ρ=110 $kg \cdot m^{-3}$, (d) en fonction de la fraction massique de fibres à T=300 K et ρ=110 $kg \cdot m^{-3}$.....209
Figure III.6-6: Effet d'épaisseur sur le calcul de la conductivité radiative d'un matériau à 300 K, les pointillés représentent le calcul de conductivité radiative en négligeant l'effet d'épaisseur.....210
Figure III.7-1 : Volume élémentaire représentatif du *blanket* aérogel et de la phase aérogel seule : a) Cas réel, b) Cas simplifié, c) Modèle de transfert thermique par analogie électrique 212
Figure III.7-2: Évolution de la conductivité thermique effective des *blankets* aérogels de silice à pression ambiante (a) En fonction de la densité à T=300 K, modèle série, (b) en fonction de la température à ρ=110 $kg \cdot m^{-3}$, modèle série, (c) En fonction de la fraction volumique de fibres à T=300 K et ρ=110 $kg \cdot m^{-3}$, modèle série-parallèle. 213
Figure III.8-1 : Corrélation linéaire entre la teneur en eau massique et la conductivité thermique effective des *blankets*.....215
Figure IV.1-1: Stratigraphie du système d'isolation intérieur 223
Figure IV.1-2 : (gauche) Vue extérieure de la cellule test, (droite) Modélisation 3 D de la cellule test. Sur l'image, on peut voir la cellule test dans laquelle a été installé le système d'isolation intérieur. 225
Figure IV.1-3 : Vue des différents instruments de mesure de la cellule test. 227
Figure IV.1-4: Vue en coupe du mur test et position des capteurs pour les essais *in situ*.....228
Figure IV.1-5: Température entre l'enduit isolant extérieur et le béton mesurée par trois sondes de température T51,T52 et T53. 229
Figure IV.1-6: (gauche) Vue extérieure sur la zone de pont thermique, (droite) Température sur la surface intérieure du pare-vapeur mesurée par trois sondes de température T104,T105 et T109. 230
Figure IV.1-7: Température sur la surface intérieure du béton mesurée par neuf sondes de température.....231
Figure IV.2-1: (gauche) Essai en porte soufflante de la cellule test en décembre 2017, (droite) Résultats d'essais d'infiltration d'air. 235
Figure IV.2-2:Vue graphique des principales données (Température intérieure et extérieure, rayonnement solaire et densité de flux thermique intérieur) pour les mois de février 2017, février 2018 et juin 2018.....238
Figure IV.2-3: Filtrage des données avec un filtre passe-bas par moyenne mobile d'intervalle 2h. 239
Figure IV.3-1 : a) Circuit 2R1C du 1er ordre, b) Circuit 3R2C du 2ème ordre 242

Figure IV.3-2 : Schéma de conservation de flux dans le mur test....244
Figure IV.3-3 : Circuit 2R1C (formulation EDO) 245
Figure IV.3-4: Intervalle de confiance des paramètres identifiés 246
Figure IV.3-5: Problèmes associés aux données bruitées pour l'estimation des paramètres 247
Figure IV.4-1:Déperditions thermiques à travers le mur test en fonction du gradient de température....250
Figure IV.4-2: Problème de mesures lié à la présence de la lame d'air....251
Figure IV.4-3: Convergence du calcul du *U-value* d'après la méthode *average* de la norme ISO9869....252
Figure IV.4-4; Défaut de la méthode *average* pour le calcul du *U-value*....253
Figure IV.4-5 : Estimation du *U-value* par méthodes dynamiques. L'estimation est faite avec les EDO et le logiciel LORD (gauche), et avec les EDS et logiciel R (droite). Les lignes pointillées correspondent à la moyenne des séries retenues et les lignes pleines aux intervalles de confiances à 95 %. Pour chaque série, la valeur de U estimée par régression est donnée avec une précision d'environ 0,5 %. 254
Figure IV.4-6 : Identification de paramètres secondaires du mur test avec LORD : (gauche) Capacité thermique effective, (droite) *g-value* et rayonnement global vertical. Les lignes pointillées correspondent aux moyennes des paramètres sur l'ensemble des séries et les lignes pleines aux intervalles de confiances à 95 %. 257
Figure IV.4-7: Identification des paramètres secondaires du mur test avec CTSM-R. (gauche) : capacité thermique effective, (milieu) : absorptance solaire de la surface extérieure et rayonnement solaire global vertical, (droite) : coefficient d'échange superficiel de la surface extérieure et vitesse de vent. 258
Figure IV.4-8: Variation de la température de surface intérieure (Tsi) et extérieure (Tse) pour la série 2b (*baseline*, hiver), la série 14b (*baseline*, été), la série 9r (*retrofit*, hiver) et la série 21r (*retrofit*, été) 259
Figure IV.4-9: Facteur et d'amortissement et déphasage du mur test obtenus à partir des résultats expérimentaux (orientation sud) 260
Figure IV.4-10: Facteur d'amortissement en fonction de la conductivité thermique effective d'un mur. 260
Figure IV.4-11: Écart de confort moyen entre la température opérative de la cellule et la température de la zone de confort (20-26°C). Les écarts négatifs correspondent aux périodes de chauffe et les écarts positifs aux périodes estivales. 262
Figure V.1-1: Représentation schématique du transfert de chaleur dans le mur....273
Figure V.1-2 : Configuration des parois et constitution murs structurants utilisés pour l'étude numérique. Isolant en bleu et mur structurant en gris....275
Figure V.1-3 : Comparaison des variables de sortie du modèle numérique 1 D avec les mesures expérimentales du mur test pour la période hivernale du 01/02/2017 au 07/02/2017. Tse : Température de surface extérieure, Te/b : Température entre l'enduit extérieur et le béton,

Tsi : Température de surface intérieure, Φi Densité de flux thermique de la surface intérieure. 278
Figure V.1-4 : Comparaison des variables de sortie du modèle numérique 1 D avec les mesures expérimentales du mur test pour la période estivale du 24/06/2017 au 30/06/2017. Tse : Température de surface extérieure, Te/b : Température entre l'enduit extérieur et le béton, Tsi : Température de surface intérieure, Φi Densité de flux thermique de la surface intérieure. 278
Figure V.1-5 : Variations de température de surface intérieure calculées pour une température sol-air variant entre 25 °C et 50 °C, pour les quatre types de murs structurants étudiés et les quatre configurations d'isolant étudiées.(Ø : cas baseline) 280
Figure V.1-6: Facteur d'amortissement (gauche) et déphasage (droite) calculés avec le modèle 1 D, pour les quatre types de murs structurants et les quatre configurations d'isolation. 281
Figure V.1-7: Coût d'exploitation et coût d'investissement lié à l'application intérieure d'un isolant NGF, par m² de surface à isoler. 283
Figure V.1-8 : Bénéfice réalisé lors de la rénovation thermique en utilisant le *blanket* aérogel au lieu d'un isolant conventionnel. Le prix de revient intègre à la fois le prix de l'isolant et de sa pose et le coût lié à la perte de surface habitable. S_{sol} est la surface habitable avant rénovation. 284
Figure V.2-1: Conditions hygrothermiques intérieures pour les simulations WUFI 287
Figure V.2-2: Analyse du climat de Grenoble pour les simulations WUFI 289
Figure V.2-3 : Teneur en eau totale dans les parois (Simulations WUFI pour le climat de Grenoble) 292
Figure V.2-4: Profil d'humidité relative et de teneur en eau pour la paroi légère. (gauche) Cas 1 : Isolation seule, (droite) Cas 2 : Isolation et pare-vapeur. 293
Figure V.2-5 : Profil d'humidité relative et de teneur en eau pour le mur massif isolé par l'intérieur. (gauche) Cas 4 : Isolation seule, (droite) Cas 5 : Isolation, pare-vapeur et lame d'air (Système Trocellen). 294
Figure V.2-6 : Profil d'humidité relative et de teneur en eau pour le mur massif isolé par l'extérieur (système ETICS de Parex). (gauche) Cas 7 : Enduit extérieur perméable, (droite) Cas 9 : Enduit extérieur peu perméable 294
Figure V.2-7 : Profil d'humidité relative et de teneur en eau pour une toiture-terrasse isolée par l'extérieur. (gauche) Cas 11 : système FLAG avec $sd = 150$ m pour la couche d'étanchéité, (droite) Cas 11 : système FLAG avec $sd = 0{,}1$ m pour la couche d'étanchéité. 295
Figure V.2-8 : Humidité relative des interfaces à risques pour chaque cas de simulation. 295
Figure V.2-9 : Indice de moisissure aux interfaces de parois étudiées, (gauche) paroi légère, (droite) isolation par l'intérieur. 296
Figure V.2-10 : Indice de moisissure aux interfaces de parois étudiées, (gauche) mur massif avec isolation par l'extérieur, (droite) isolation toiture-terrasse. 297
Figure V.2-11 : Critère ASHRAE 160P des cas étudiés. 298

Figure V.3-1 : Échanges thermiques qui ont lieu dans une zone thermique 299
Figure V.3-2 : Classification de Köppen du climat en Europe 304
Figure V.3-3 : Géométrie du bâtiment tertiaire et découpage des zones thermiques. 305
Figure V.3-4 : Géométrie de l'appartement étudié 306
Figure V.3-5 : (gauche) Besoin annuel net en chauffage du bâtiment tertiaire, (droite) Besoin annuel net en refroidissement du bâtiment tertiaire. 307
Figure V.3-6 : Besoin mensuel net en chauffage et en refroidissement pour les villes de Valence (Bsk), Nice (Cas), Bruxelles (Cfb) et Stockholm (Dfb). Le cas *baseline* correspond à un appartement non isolé, le cas *retrofit* correspond à la rénovation de l'appartement par le système d'isolation intérieur Trocellen. 308
Figure V.3-7 : Besoin annuel net en chauffage et en refroidissement pour les villes de Valence (Bsk), Nice (Csa), Bruxelles (Cfb) et Stockholm (Dfb), pour une année. 309
Figure V.3-8 : Résultats de simulation sur le besoin annuel tous usage en énergie finale 310
Figure V.3-9 : Consommation en énergie primaire pour l'appartement de 70 m^2 en fonction de l'épaisseur d'isolant NGF appliquée. 311
Figure V.3-10 : Indice de confort thermique pour l'appartement (70 m^2) pour les climats de Barcelone (Csa) et Lyon (Cfb) 312
Figure V.3-11 : Température opérative dans l'appartement pour la période estivale 313

Table des tableaux

Tableau I.2-1 : Coefficients d'échanges globaux utilisés dans le cadre de la RT 2012 14
Tableau I.3-1 : Propriétés ISOLE d'après la classification ACERMI 20
Tableau I.3-2 : Recommandations des RT existant, RT 2012 et RT 2020 sur les coefficients de transmission thermique des parois opaques 22
Tableau I.3-3 : Rendement d'équipements de chauffage usuels 26
Tableau I.3-4 : Résumé des propriétés des principaux isolants utilisés dans l'isolation thermique du bâtiment 29
Tableau I.4-1 : Propriétés des aérogels de silice séchés par voie supercritique 44
Tableau I.5-1 : Coefficient d'extinction spécifique moyen de Rosseland 66
Tableau II.1-1 : Matériaux étudiés dans le cadre de la thèse 87
Tableau II.2-1: Modes de vibration des molécules en analyse FTIR 89
Tableau II.2-2 : Détermination des propriétés infrarouges à partir des mesures FTIR d'un échantillon diffusant. Dans le cas présent, le matériau est considéré comme homogène pour le calcul des coefficients radiatifs infrarouges. 90
Tableau II.2-3: Valeur de la différence de pression de vapeur d'eau selon les conditions d'essais pour une température de 23 °C. 118
Tableau II.3-1: Pourcentage massique et atomique des composés des aérogels de silice natifs 129
Tableau II.3-2: Composition chimique des mats fibreux utilisés pour les *blankets* aérogels 130
Tableau II.3-3: Propriétés texturales des *blankets* aérogels et des mats fibreux 131
Tableau II.3-4 : Fraction fibreuse et macroporeuse des échantillons de *blanket* aérogel 139
Tableau II.3-5: Comportement hydrique des matériaux entre 1% et 98% d'humidité relative. Les valeurs de reprise hydrique sont données avec une erreur standard de 10%. 146
Tableau II.3-6 : Angle de contact entre une goutte d'eau et la surface du matériau 146
Tableau II.3-7: Conductivité thermique des laines avant imprégnation 151
Tableau II.3-8: Différence de conductivité thermique observée entre les mesures par FOX 150 et microfluxmètre 153
Tableau II.3-9 : Influence de l'humidité relative sur la conductivité thermique des *blankets* aérogels,*mesuré au microfluxmètre, **mesures *in situ* issues de [32]. Les valeurs de conductivité thermique sont données avec une erreur de 5%. 154
Tableau II.3-10: Séchage des échantillons au court de la mesure. En fin de mesure (HR=90%), les échantillons les plus épais auront une fraction massique d'eau plus importante. 155
Tableau II.3-11: Conductivité thermique mesurée au microfluxmètre des *blankets* NGF_6mm et NGF_12mm après sollicitations mécaniques. 160
Tableau II.3-12 ; Propriétés mécaniques en compression des *blankets* NGF_6mm et NGF_20mm 167
Tableau II.3-13: Résultats d'essais en flexion 3 points des *blankets* NGF 169
Tableau II.3-14 : Propriétés mécaniques en cohésions des *blankets* 171

TABLE DES TABLEAUX

Tableau II.4-1: Propriétés thermiques et mécaniques des *blankets* étudiés par rapport aux principaux matériaux composites à base d'aérogel du marché 173
Tableau II.4-2 : Modalités d'emploi des *blankets* aérogels étudiés selon la certification ACERMI 175
Tableau III.6-1: Coefficient d'extinction spécifique moyen de Rosseland des *blankets* aérogels étudiés 207
Tableau III.8-1 : Coefficient de proportionnalité entre conductivité thermique humide et teneur en eau massique 215
Tableau IV.1-1 : Propriétés thermophysiques du système d'isolation 224
Tableau IV.2-1 : Résumé des données acquises pendant la campagne de mesures. Hiver en bleu, printemps en vert, été en rouge et automne en orange. 237
Tableau IV.3-1: Revue des différentes méthodes d'estimation de paramètres pour une cellule test 240
Tableau IV.4-1 : Résumé des résultats de *U-value* et de résistance thermique totale en utilisant la méthode *average* 252
Tableau IV.4-2 :Résultats de *U-value* ($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$) et *g-value* avec la méthode de la régression linéaire (Équation (IV.11)) 253
Tableau IV.4-3 : *U-value* calculé avec les méthodes dynamiques. L'erreur correspond à l'erreur statistique entre les séries de mesures. 255
Tableau IV.4-4 : Performances du système d'isolation selon les réglementations actuelles 256
Tableau V.1-1 : Propriétés thermophysiques des matériaux utilisés pour les simulations numériques 275
Tableau V.1-2: Comparaison des résultats de facteur d'amortissement f et de déphasage ϕ avec les résultats de la littérature. 276
Tableau V.1-3 : Propriétés thermophysiques des murs pour les cas de Mackey 276
Tableau V.1-4: Temps de retour sur investissement de la rénovation de bâtiment non isolé par le *blanket* aérogel. 282
Tableau V.2-1: Configuration des murs simulés avec WUFI 286
Tableau V.2-2: Indice de moisissure et signification 291
Tableau V.2-3: Taux de séchage des parois au bout de dix ans de simulation 293
Tableau V.2-4 :Résistance thermique de la paroi sèche et perte relative de résistance thermique moyenne de la paroi due à la présence d'humidité. Simulations WUFI effectuées sur dix années. 298
Tableau V.3-1: Villes sélectionnées pour les simulations avec Energy Plus et description des climats associés d'après la classification de Köppen. 304
Tableau V.4-1 : Résumé des résultats de simulation hygrique. $s10$ est le taux de séchage de la paroi sur 10 ans, ui est la tendance de séchage de chacune des couches de la paroi, RC est le risque de condensation, IM est l'indice de moisissure maximal, ΔR est la perte relative de résistance thermique de la paroi en prenant en compte l'humidité relative. 315

Nomenclature

La nomenclature ci-dessous présente les principaux symboles et termes utilisés dans la thèse sans pour autant être exhaustif. En particulier, le chapitre III a sa propre nomenclature, plus complète, en début de chapitre.

Caractère latins

a Diffusivité thermique [$m^2 \cdot s^{-1}$]

A Coefficient d'absorption liquide [$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1/2}$]

b Largeur [m]

c Chaleur spécifique [$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$]

C Capacité thermique effective [$kJ \cdot K^{-1}$]

C_V Capacité thermique volumique [$J \cdot m^{-3} \cdot K^{-1}$]

d Epaisseur [m]

d_p Diamètre de particule [m]

D Diamètre de pore [m]

e Coefficient d'extinction spécifique [$m^2 \cdot kg^{-1}$]

$e *_R$ Extinction spécifique effective moyenne de Rosseland [$m^2 \cdot kg^{-1}$]

E Coefficient d'extinction [m^{-1}]

$\hat{E}$ Effusivité thermique [$W \cdot K^{-1} \cdot m^{-2} \cdot s^{1/2}$]

$E_{b\Lambda}$ Exitance énergétique spectrale du corps noir [$W \cdot m^{-2} \cdot \mu m$]

E_b Exitance énergétique totale du corps noir [$W \cdot m^{-2}$]

f Facteur d'amortissement [–]

F Facteur de couplage [–]

F_c Facteur de conversion entre énergie primaire et énergie finale [–]

g Densité de flux de masse [$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$], Coefficient de transmission solaire [–]

G_v Rayonnement solaire global vertical [$W \cdot m^{-2}$]

h Coefficient de transfert thermique surfacique [$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$]

H Enthalpie [J]

K_0 Module de compression volumique [MPa]

L Echange de chaleur entre le corps et l'environnement [$W \cdot m^{-2}$]

m Masse [kg]

M Activité métabolique [$W \cdot m^{-2}$]

n Indice de réfraction [–]

P Pression [Pa] ou [bar]

q Densité de flux thermique [$W \cdot m^{-2}$]

Q Déperditions thermiques [$W \cdot m^{-2}$]

R Résistance thermique [$m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$]

s_d Epaisseur équivalente d'air pour la résistance à la diffusion de vapeur d'eau [m]

S	Surface [m^2]
S_{BET}	Surface spécifique (méthode BET) [$m^2 \cdot g^{-1}$]
t	Temps [s]
T	Température [K] ou [°C]
u	Teneur en eau massique [$kg \cdot kg^{-1}$]
U	Coefficient de transmission thermique [$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$]
V	Volume [m^3]
w	Teneur en eau massique par volume [$kg \cdot m^{-3}$]
W	Perméance à la vapeur d'eau [$mg \cdot m^{-2} \cdot h^{-1} \cdot Pa^{-1}$]
Z	Résistance à la vapeur d'eau [$m^2 \cdot h \cdot Pa \cdot mg^{-1}$]

Caractère grecques

α	Coefficient d'absorption [–]
β	Coefficient du gaz qui dépend de son coefficient adiabatique et de son coefficient d'accommodation [–]
γ	Tension superficielle de surface d'un liquide [$N \cdot m^{-1}$]
δ	Perméabilité à la vapeur d'eau [$mg \cdot m^{-1} \cdot h^{-1} \cdot Pa^{-1}$]
$\overline{\Delta Tc}$	Ecart moyen entre la température opérative et la zone de confort [°C]
ε	Emissivité [–]
θ	Angle de mouillage [°]
λ	Conductivité thermique [$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$]
Λ	Libre parcours moyen [m], Longueur d'onde [nm]
μ	Coefficient de résistance à la diffusion de vapeur d'eau [–]
ν	Coefficient de Poisson [–]
Π	Porosité [–]
ρ	Masse volumique de l'aérogel [$kg \cdot m^{-3}$]
σ	Contrainte [MPa], Nombre d'onde [cm^{-1}]
φ	Humidité relative [%]
τ	Transmittance [–]
ϕ	Déphasage [h]
Φ	Flux thermique [W]

Indices

$*$	Effectif
a	Apparent, Aérogel
c	Convectif, Composite
cap	Capillaire
$coupl$	Couplage
e	Extérieur
eff	Effectif
env	Enveloppe
f	Fibres
g	Gaz
H	Humide
i	Intérieur
l	Liquide
$macro$	Macropores
max	Maximum
$meso$	Mésopores
min	Minimum
op	Opérative
p	Particule
pht	Photons
r	Radiatif
RM	Radiative Moyenne
s	Solide, Surface
sa	Sol air
sat	Saturation
v	Vapeur
^{V}	Ventilation

Opérateurs

$\boldsymbol{\nabla}$	Opérateur différentiel
$\boldsymbol{\nabla}\Phi$	Gradient de Φ
$\boldsymbol{\nabla}.\boldsymbol{a}$	Divergence de $\boldsymbol{a}$
$\partial/\partial t$	Dérivée par rapport au temps

Constantes Fondamentales

c	Vitesse de la lumière
h	Constante de Planck
k_B	Constante de Boltzmann
N_A	Constante d'Avogadro
R_G	Constante des gaz
σ	Constante de Stéphan Boltzmann

Nombres adimensionnels

Fo	Nombre de Fourier
Kn	Nombre de Knudsen
Ra	Nombre de Rayleigh

Abréviations

ACF	AutoCorrelation Function
ADI	Alternating Direction Implicit
ARMA	AutoRegressive Moving Average
ARX	AutoRegressive eXogenous
ASHRAE	American Society of Heating, Refrigerating and Air-Conditioning Engineers
ASTM	American Society for Testing and Materials
ATR	Attenuated Total Reflectance
BBC	Bâtiment Basse Consommation
BEPOS	Bâtiment à Energie POSitive
BET	Brunauer–Emmett–Teller
BJH	Barret-Joyner-Halenda
BSE	Back-Scattered Electron
CAGR	Compound Annual Growth Rate
CCF	Cross-Correlation Function
Cep	Consommation en Energie Primaire
CLO	Courtes Longueurs d'onde
COP	Coefficient Of Performance
COV	Composés Organiques Volatils
DOE	Department Of Energy
DSC	Differential Scanning Calorimetry
EDO	Equation Différentielle Ordinaire
EDS	Equation Différentielle Stochastique
EDX	Energy Dispersive X-ray
FTC	Fonction de Transfert de Conduction
FTIR	Fourier Transform InfraRed spectroscopy
GF	Glass Fibers
GLO	Grandes Longueurs d'onde
HAMT	Heat And Moisture Transfer
HMDZ	Hexamethyldisilazane
HR	Humidité Relative
HVAC	Heating, Ventilation and Air-Conditioning
IM	Indice de Moisissure
ITE	Isolation Thermique par l'Extérieur
ITI	Isolation Thermique par l'Interieur
MEB	Microscopie Electronique à Balayage
MTMS	Methyltrimethoxysilane
NGF	Needled Glass Fibers

PCA	Principal Component Analysis
PET	PolyEthylène Téréphtalate
PF	Phénolique
PIV	Panneau d'Isolation sous Vide
PMV	Predicted Mean Vote
PPD	Predicted Percentage of Dissatisfied
PS	Polystyrène
PUR	Polyuréthane
PV	PhotoVoltaïque
PVA	Poly(Acétate de Vinyle)
RC	Résistance-Capacitance
RF	Resorcinol-Formaldahyde
RT	Réglementation Thermique
RX	Rayons X
SE	Scattered Electron
STP	Standard Temperature Pressure
TCI	Thermal Comfort Index
TEOS	TetraEthylOrthoSilicate
TMCS	TriMethylChloroSilane
TMOS	TetraMethylOrthoSilicate
TSE	Tensile Strength Effect
VER	Volume Elementaire Représentatif

Introduction générale

Le développement rapide de notre société dans le monde actuel exige un besoin d'énergie toujours plus croissant, et soulève de sérieuses préoccupations quant à l'épuisement et l'approvisionnement des ressources énergétiques, avec de lourdes conséquences environnementales. La prise de conscience environnementale a ouvert la voie à une économie bas-carbone et à un nouveau modèle de croissance verte. Accélérer la transition vers une économie compétitive bas-carbone est à la fois une grande opportunité et une nécessité pour l'Europe. L'Union européenne est bien placée pour mener à bien cette transition à travers ses politiques énergétiques et ses actions sur la scène internationale. Les nouvelles directives issues de la COP21 ont mené à l'adoption des mesures « Clean Energy for All Europeans » par la Commission Européenne, ayant pour objectif une réduction des émissions de CO_2 de 40 % d'ici 2030. L'objectif pour les pays européens n'est pas seulement d'appliquer les directives, mais ils doivent faire figure de leaders mondiaux de la transition énergétique. Pour mener à bien ce challenge, l'accent est mis sur l'efficacité énergétique et le développement des énergies renouvelables.

Le secteur du bâtiment constitue un levier majeur de la transition énergétique car il possède le plus grand potentiel d'économie d'énergie inexploité. En Europe, il est responsable de 40 % de la consommation d'énergie finale et 36 % des émissions de gaz à effet de serre. La rénovation du parc immobilier européen est d'un enjeu capital, non seulement parce que le secteur du bâtiment est le plus énergivore, mais surtout parce que 75 % des bâtiments européens sont énergétiquement inefficaces. En particulier, l'énergie utilisée pour le chauffage des bâtiments peut être fortement réduite en isolant correctement les enveloppes de bâtiment. Cela implique l'utilisation d'épaisseur d'isolant toujours plus grande, qui peut poser problème pour la rénovation de bâtiments en zone urbaine, notamment vis-à-vis la perte d'espace habitable engendrée par une isolation intérieure.

Ces vingt dernières années ont vu l'émergence de nouveaux matériaux dits « super-isolants » ayant des performances énergétiques deux à trois fois supérieures à celles des isolants traditionnels, à épaisseur équivalente. Parmi ces super-isolants, les matériaux à base d'aérogel font partie des candidats ayant un fort potentiel d'application dans l'isolation thermique du bâtiment, avec une conductivité thermique pouvant atteindre 0,015 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Les aérogels doivent leur faible conductivité thermique à leur réseau mésoporeux et à leur squelette nanostructuré limitant à la fois le transfert thermique par conduction gazeuse et solide. Cependant, la fragilité inhérente de l'aérogel, et son processus de fabrication coûteux sont un frein considérable pour son exploitation en tant qu'isolant thermique. Les récentes recherches dans le domaine de l'aérogel portent sur l'amélioration de ses propriétés mécaniques et le développement de nouvelles techniques de fabrication moins coûteuses et plus enclines à l'industrialisation.

L'objectif de la thèse est d'étudier et de caractériser un matériau composite à base d'aérogel de silice, conçu via une méthode de fabrication innovante. Le matériau composite fait partie de la famille des *blankets* aérogels de silice, qui sont constitués d'aérogels de silice et d'un mat fibreux agissant comme renfort mécanique.
La thèse propose une étude complète de ce matériau en relation avec l'isolation thermique, depuis l'étude des transferts thermiques à l'échelle nanométrique dans le matériau, jusqu'à l'étude de l'impact énergétique de la rénovation de bâtiments isolés par de tels matériaux, en passant par la caractérisation du matériau à différentes échelles en laboratoire et en cellule test.

La thèse est articulée autour de cinq chapitres :

- Le chapitre I propose un état de l'art sur l'isolation thermique du bâtiment, les aérogels de silice, et les transferts thermiques dans ces derniers. La partie sur l'isolation thermique fournit les concepts clefs de transferts thermiques dans le bâtiment nécessaires à la bonne compréhension de la thèse. La partie sur les aérogels décrit leurs propriétés physiques, leurs utilisations et les récents développements dans les procédés de synthèse et de fabrication. La partie sur les transferts de chaleur décrit les modèles de transfert thermique utilisés de nos jours pour les aérogels de silice. On y trouvera les limites des modèles actuels et les phénomènes de couplages thermiques récemment mis en évidence.
- Le chapitre II est subdivisé en trois parties. La première partie décrit les *blankets* aérogels étudiés et leur procédé de fabrication. La seconde partie décrit toutes les méthodes expérimentales employées au cours de la thèse pour la caractérisation des matériaux. La troisième partie présente les résultats de caractérisation et conclut quant au potentiel du matériau dans l'isolation thermique du bâtiment.
- Le chapitre III propose des modèles analytiques de transfert thermique dans les *blankets* aérogels. Les modèles ainsi proposés permettent d'étudier les relations entre les paramètres morphologiques de l'aérogel et le transfert de chaleur qui a lieu en son sein. L'influence des paramètres extérieurs tels que la pression, la température et l'humidité est également étudiée afin d'évaluer le potentiel isolant du matériau sous différents environnements et pour d'autres applications.
- Le chapitre IV est consacré à l'étude d'un système d'isolation intérieur basé sur le *blanket* aérogel. Le système d'isolation est mis en place dans une cellule test et ses performances énergétiques sont évaluées par le biais de mesures *in situ* en conditions climatiques réelles. Différentes méthodes d'estimation de paramètres sont proposées, pour déterminer les paramètres caractéristiques de notre système (résistance thermique entre autres).
- Le chapitre V présente les simulations numériques de bâtiments isolés par le *blanket* aérogel. On y étudie l'effet du système isolant sur les déperditions thermiques et la consommation énergétique des bâtiments. Les simulations sont effectuées pour plusieurs

techniques constructives (béton, briques, ...), différentes configurations de murs périphériques (position de l'isolant), différentes épaisseurs d'isolant, et ce, pour plusieurs localisations en Europe.

Chacun des chapitres pourrait constituer à lui seul un sujet de thèse à part entière, et il va de soi qu'avec un sujet de thèse aussi vaste (de l'échelle nanométrique à l'échelle d'un bâtiment), certains éléments d'étude n'ont pu être abordés.

Ces travaux de thèse ont été menés dans le groupe Matériau Procédé pour l'énergie (MATPRO) du centre Procédé, Energies Renouvelables et Systèmes Energétiques (PERSEE) du site Mines ParisTech de Sophia-Antipolis. La thèse s'inscrit dans le cadre du projet européen H2020 Homeskin (HOMES Key INSulating material) qui vise à développer un nouveau matériau composite à base d'aérogel de silice compétitif pour l'isolation thermique de bâtiment.

I. État de l'art

Table des matières

Introduction 8

I.1. Contexte énergétique actuel dans le domaine du bâtiment 9
I.2. Échanges de chaleur entre un bâtiment et son environnement 12

I.2.1. Transferts thermiques 12
I.2.2. Transferts d'humidité 14
I.2.3. Le confort thermique 15

I.2.3.a. Modèle simple de confort thermique 15
I.2.3.b. Modèle conventionnel de confort thermique 16
I.2.3.c. Modèle adaptatif 17
I.2.3.d. L'indice de confort thermique 18

I.3. L'isolation thermique dans le bâtiment 19

I.3.1. L'enjeu de l'isolation thermique 19

I.3.1.a. Aspect économique 21
I.3.1.b. La position de l'isolant 21
I.3.1.c. Performances à attendre du système d'isolation 22

i. À l'échelle du mur 22

ii. À l'échelle du bâtiment 25

I.3.2. Les isolants conventionnels 27

I.3.2.a. Les isolants synthétiques 27
I.3.2.b. Les isolants d'origine minérale 28
I.3.2.c. Les isolants écologiques 28

I.3.3. Les super-isolants 29

I.3.3.a. Les panneaux d'isolation sous vide 30
I.3.3.b. Les super-isolants à pression ambiante 32

I.4. Les aérogels de silice 33

I.4.1. Histoire des aérogels de silice 33

I.4.1.a. Découverte et premiers travaux par Kistler 33
I.4.1.b. Les avancées de la synthèse des aérogels 34
I.4.1.c. Les nouvelles techniques 35
I.4.1.d. Des aérogels pour la super isolation thermique 36

I.4.2. Synthèse des aérogels de silice 37

I.4.2.a. Voie silicate de sodium....38
I.4.2.b. Voie alkoxyde....38
I.4.2.c. Vieillissement....39
I.4.2.d. Lavage, échange de solvant et modification de surface....41
I.4.2.e. Séchage du gel....42
i. Le problème des contraintes capillaires....42
ii. Les solutions de séchage....42
I.4.3. Propriétés et applications....44
I.4.3.a. Le cas de l'isolation thermique du bâtiment : vers de nouveaux produits aérogels 46
I.4.3.b. Considérations environnementales et sanitaires....48
I.4.3.c. Futur de l'aérogel....49
I.5. Les transferts de chaleur dans les aérogels de silice....50
I.5.1. Introduction....50
I.5.2. Effets à prendre en compte dans le transfert de chaleur....51
I.5.2.a. Effet de taille....52
I.5.2.b. Effets de couplage....53
i. Couplage conduction gazeuse - conduction solide....53
ii. Couplage conduction - rayonnement....55
I.5.2.c. Influence de l'épaisseur optique du matériau....55
I.5.2.d. Effet de l'adsorption d'eau....57
I.5.3. Modèle de conductivité thermique d'un aérogel de silice optiquement épais....58
I.5.3.a. Modèles de conductivité solide....59
i. Modèles théoriques....59
ii. Modèles empiriques....60
I.5.3.b. Modèles de conductivité gazeuse....60
I.5.3.c. Modèles de conductivité radiative....65
I.5.4. Extension des modèles aux *blankets* aérogels....66
I.6. Conclusions sur l'état de l'art....69
REFERENCES....71

Introduction

Le chapitre présent constitue un état de l'art sur les récentes problématiques d'isolation thermique du bâtiment. Premièrement, la situation énergétique actuelle dans le domaine du bâtiment est décrite. L'augmentation des émissions de CO_2 dans ce domaine a conduit ces dernières années à la création de réglementations thermiques de plus en plus strictes. Une deuxième partie traite des phénomènes de transferts thermiques rencontrés dans un bâtiment et leur lien avec la consommation énergétique d'un bâtiment et le confort thermique. Cette partie décrit l'ensemble des notions nécessaires à la bonne compréhension du chapitre IV « Expérimentation à l'échelle du système » et du chapitre V « Simulations numériques à l'échelle du système et du bâtiment ». Une troisième partie concerne l'état de l'art actuel de l'isolation thermique du bâtiment, son enjeu et ses modalités d'emploi. Les isolants thermiques classiques sont présentés puis les super-isolants sont introduits. En particulier, les isolants thermiques à base d'aérogel font l'objet d'une description détaillée dans la quatrième partie. On y discute de l'évolution de la synthèse et des propriétés de l'aérogel au cours des dernières années et des récentes problématiques liées au besoin de minimiser le ratio coût/performances pour de tels isolants. Cette partie de l'état de l'art permet une meilleure compréhension du chapitre II de caractérisation des matériaux aérogels étudiés. Enfin, la cinquième partie décrit l'état de l'art actuel sur les modélisations des transferts de chaleur au sein des aérogels de silice. La compréhension du transfert thermique dans les aérogels fait intervenir la thermique des matériaux poreux nanostructurés. L'état de l'art est assez développé pour les aérogels de silice, mais encore très peu fourni pour les *blankets* aérogels. Ce cinquième chapitre sert de base pour la construction d'un modèle de conductivité thermique effective des matériaux de type blanket, présenté au chapitre III « Modèle de transfert thermique dans les *blankets* aérogels de silice ».

I.1 Contexte énergétique actuel dans le domaine du bâtiment

Après des décennies pendant lesquelles l'énergie bon marché coulait à flots, nous sommes rentrés, depuis les quarante dernières années dans une période où les crises sont devenues courantes. Ce bouleversement du paysage énergétique est particulièrement préoccupant du fait de l'impact des crises énergétiques sur les sociétés humaines : récession économique, augmentation du chômage, conflits internationaux relatifs à l'accès à l'énergie, aux chocs pétroliers et au réchauffement climatique global. L'industrie de ces quarante dernières années a vu l'essor de nouvelles problématiques liées à l'efficacité énergétique et à la limitation du réchauffement climatique. Tous les secteurs sont concernés et en particulier celui du bâtiment, qui représente à lui seul 40 % de l'énergie totale finale consommée en Europe pour l'année 2015 [1]. Le secteur du bâtiment est le plus énergivore, suivi par les transports (32 %), l'industrie (26 %) et l'agriculture (2 %). En Europe, la plupart des pays ont lancé une politique d'économie d'énergie après la seconde crise pétrolière dans les années soixante-dix. Du côté français, le gouvernement a mis en place la première réglementation thermique – RT 1974 – qui visait à réduire les déperditions thermiques de 25 % sur tous les bâtiments. Depuis le protocole de Kyoto en 1997, un cadre réglementaire de plus en plus précis s'établit et les différentes normes RT imposent des améliorations énergétiques considérables. Les réglementations thermiques ont fait leurs preuves au cours des 30 dernières années en divisant par 2 la consommation énergétique moyenne d'un logement pour atteindre aujourd'hui 150 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ en énergie primaire. La dernière réglementation en date, la RT 2012 [2] impose que tous les bâtiments neufs aient une consommation énergétique moyenne inférieure à 50 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ en énergie primaire. Quant aux bâtiments privés existants, ils doivent avoir réduit leur consommation d'énergie primaire de 38 %.

Le chauffage représente à lui seul 67 % de la consommation énergétique d'un bâtiment bien que sa part baisse depuis les années 2000 (-2,3 %/an en Europe [1]). Cette baisse est due à l'apparition de systèmes de chauffage plus efficaces, à la rénovation des habitations et à la substitution de certains combustibles (charbon par électricité par exemple). Le chauffage de l'eau intervient en second avec une part de 13 %, puis les équipements électriques (10 %) en hausse avec le développement des outils informatiques et de télécommunication dans notre quotidien. À cela s'ajoutent les besoins énergétiques pour la cuisine (6 %), la lumière (2 %) et l'air conditionné (< 1 %).

Depuis la crise économique de 2008, la consommation énergétique des bâtiments continue de diminuer mais à un rythme de plus en plus faible. La transition vers des consommations encore plus faibles passe par plusieurs étapes : l'amélioration de l'efficacité des systèmes énergétiques, la rénovation des bâtiments existants ainsi que leurs équipements, l'intégration d'énergies renouvelables, et la prise de conscience collective de la surconsommation énergétique de l'homme qui doit mener à une utilisation plus mesurée de l'énergie.

En France aujourd'hui, les niveaux des performances énergétiques des bâtiments existants sont plutôt médiocres. Plus de la moitié des bâtiments sont classés en étiquette énergie D à G, soit une consommation jusqu'à 450 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ pour les bâtiments les moins performants.

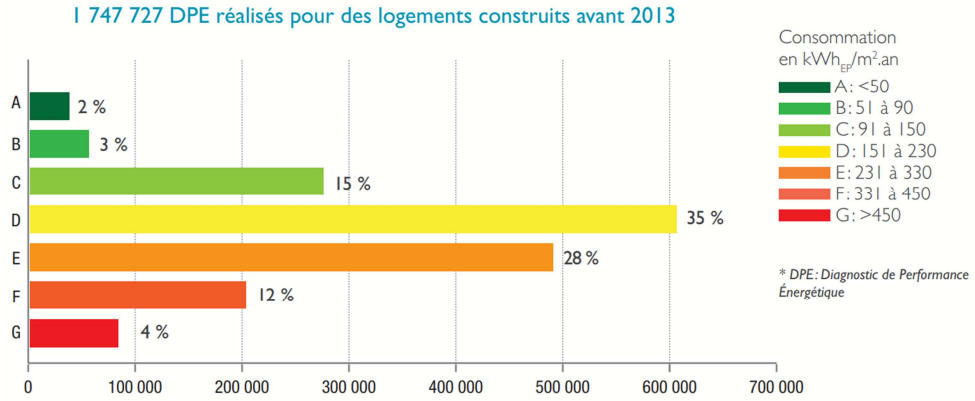


Figure I.1-1 : État de la consommation énergétique française des bâtiments existants [3]

Une étude menée par la Direction de l'Habitat, de l'Urbanisme et des Paysages (DHUP 2011) estime à environ 65 % le nombre de logements français construit avant 1974. Cette période correspond à l'avant-choc pétrolier, lorsqu'aucune réglementation thermique n'était en place. Rares étaient les bâtiments ayant une isolation thermique à leur construction. Aujourd'hui ces logements représentent plus de 70 % de la consommation énergétique finale tout usage du parc immobilier français et on estime à 7,4 millions le nombre de logements particulièrement énergivores (étiquetés F ou G).

La RT 2012

La priorité de la RT 2012 est l'amélioration de la qualité de l'enveloppe des bâtiments grâce à l'utilisation d'isolants certifiés, au traitement des ponts thermiques, et à une bonne étanchéité à l'air afin de réduire les déperditions thermiques du bâti. Une bonne isolation est susceptible d'apporter plus de confort en été comme en hiver ; cela permettrait de faire jusqu'à 80 % d'économie d'énergie et de valoriser le patrimoine immobilier. L'amélioration de l'efficacité énergétique passe par le développement des rénovations globales qui sont les seules à même d'améliorer significativement la performance énergétique.

La RT 2012 s'appuie sur trois indicateurs principaux :

1. L'indice « Cep » qui caractérise la consommation en énergie primaire du bâtiment neuf. Celui-ci doit globalement être inférieur à 50 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ avec quelques écarts tolérés selon le climat (jusqu'à 65 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ dans le nord de la France). L'indice Cep prend en compte le chauffage, le refroidissement, la ventilation, l'eau chaude sanitaire, l'éclairage et la production locale d'énergie.
2. L'indice « Tic », propre au bâtiment, caractérise le confort d'été pour des bâtiments dans lesquels il est possible d'assurer un bon niveau de confort en été sans avoir recours à un système actif de refroidissement. La température la plus

élevée atteinte dans les locaux « Tic » ne doit pas excéder un plafond qui dépend du type d'occupation et de la localisation.

3. L'indice « Bbio » permet de caractériser l'impact de la conception bioclimatique sur la performance énergétique du bâti. Il constitue une innovation majeure de la RT 2012. La démarche bioclimatique optimise entre autres l'orientation du bâtiment, les apports solaires, l'éclairage naturel et l'inertie thermique du bâtiment, indépendamment des systèmes énergétiques mis en œuvres.

En 2020, une nouvelle réglementation thermique devrait faire suite à la RT 2012. Cette RT 2020 a pour objectif que tous les nouveaux bâtiments construits dès 2020 aient une consommation énergétique moyenne quasi-nulle et devra ensuite étendre cette contrainte énergétique à la rénovation d'anciens bâtiments. L'ambition de la RT 2020 va au-delà de l'amélioration de l'efficacité énergétique, car elle prévoit de couvrir les besoins énergétiques à partir d'énergies renouvelables produites sur place.

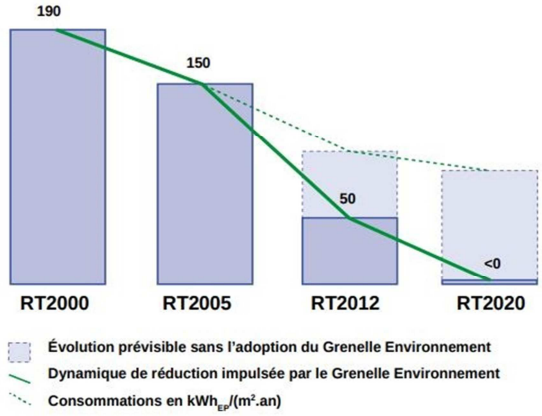


Figure I.1-2 :Évolution des exigences réglementaires de consommation énergétique des bâtiments neufs [2]

I.2 Échanges de chaleur entre un bâtiment et son environnement

I.2.1 Transferts thermiques

Un bâtiment peut être vu comme un système thermodynamique complexe en interaction avec son environnement extérieur et intérieur. On peut l'approximer à une enveloppe (les parois) et à une ou plusieurs zones thermiques représentant un volume d'air de température unique. Le bâtiment est soumis à des influences thermiques internes telles que les occupants, les équipements et l'éclairage, et également à des influences thermiques externes telles que le vent, le rayonnement solaire, le rayonnement grandes longueurs d'onde provenant du ciel et de l'environnement proche. La connaissance de ces transferts thermiques est essentielle pour le dimensionnement de systèmes de chauffage/refroidissement ainsi que pour le confort des occupants.

La chaleur échangée entre le bâtiment et son environnement se fait de différentes façons :

Par conduction solide à travers l'enveloppe du bâtiment (murs, sols, toit, fenêtres). Le transfert thermique suit la loi de diffusion de la chaleur dans les solides.

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla.(\lambda \nabla(T)) \tag{I.1}$$

ρ représente la masse volumique du matériau, c sa chaleur spécifique, λ sa conductivité thermique et T la température.

Par convection entre les surfaces des parois et l'air. Le transfert de chaleur suit la loi de Newton :

$$\Phi = h_c S(T_{air} - T_s) \tag{I.2}$$

Φ est le flux thermique, par convention on le choisira positif lorsque le flux thermique entre dans la paroi, h_c le coefficient d'échange convectif, S l'aire de la surface de la paroi, T_s la température de surface de la paroi et T_{air} la température de l'air loin de la paroi. Le coefficient d'échange convectif est obtenu de façon expérimentale et peut différer de 12 % selon les auteurs [4]–[6]. Il dépend entre autres du vent, de l'orientation de la paroi et de sa rugosité.

Par rayonnement entre les parois et l'environnement extérieur proche ou lointain. Dans le bâtiment, on considère deux gammes spectrales distinctes pour l'étude du rayonnement. Les courtes longueurs d'onde inférieures à 2,5 µm et les grandes longueurs d'onde supérieures à 2,5 µm. Pour les courtes longueurs d'onde, il s'agit de l'énergie reçue directement par le soleil ainsi que par ses multiples réflexions via les autres parois. Le flux courtes longueurs d'onde (CLO) entrant dans la paroi opaque i est alors :

$$\Phi_{CLO} = S_i . \alpha_{CLO} . (I^0_{CLO} + \sum_{j=1}^{n} F_{ij} \rho_j I_{j,CLO}) \quad \text{(I.3)}$$

α_{CLO} est le coefficient d'absorption du matériau en surface de la paroi pour les courtes longueurs d'onde. I^0_{CLO} est la densité de flux thermique courtes longueurs d'onde arrivant directement sur la paroi, F_{ij} est le facteur de forme entre la surface i et j, ρ_j est le coefficient de réflexion de la surface j, et $I_{j,CLO}$ est la densité de flux thermique courtes longueurs d'onde arrivant sur la paroi j. Il s'agit du rayonnement solaire direct et diffus incident, mais aussi des réflexions provenant du sol ou des autres parois.

Concernant les grandes longueurs d'onde, il s'agit du rayonnement infrarouge du sol, du ciel ou de l'environnement extérieur proche. En intérieur, il s'agit de l'émission propre des autres parois, du mobilier, des occupants ou bien des luminaires. Le flux net grandes longueurs d'onde (GLO) entrant est ainsi :

$$\Phi_{GLO} = S(\alpha_{GLO} . (I^0_{GLO} + \sum_{j=1}^{n} F_{ij} \rho_j I_{j,GLO}) - \varepsilon_{GLO} . \sigma T_s^4) \quad \text{(I.4)}$$

α_{GLO} est le coefficient d'absorption du matériau en surface de la paroi pour les grandes longueurs d'onde. I^0_{GLO} est la densité de flux thermique grandes longueurs d'onde arrivant directemetement sur la paroi et $I_{j,GLO}$ la densité de flux thermique grandes longueurs d'onde arrivant sur la paroi j. ε_{GLO} est le coefficient d'émissivité du matériau dans les grandes longueurs d'onde, il est égal à α_{GLO} d'après la loi de Kirchhoff. σ est la constante de Stephan-Boltzmann et T_s la température de surface de la paroi. Le terme de gauche correspond au flux GLO entrant dans la paroi et celui de droite à l'émittance propre de la paroi d'après la loi de Stephan-Boltzmann. À noter que dans le cas de courtes longueurs d'onde, l'émittance propre est négligeable pour les températures rencontrées dans le bâtiment.

Certaines simplifications sont couramment faites pour permettre de linéariser cette relation. En considérant toutes les parois comme noires et à la même température, on peut linéariser la relation précédente en ambiance intérieure.

$$\Phi_{GLO,i} = S . h_{r,i} (T_{RM} - T_s) \quad \text{(I.5)}$$

$h_{r,i}$ est le coefficient d'échange radiatif intérieur et vaut environ 5 $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$, T_{RM} est la température radiative moyenne de la pièce.

De façon similaire, l'équation du flux GLO extérieur peut être linéarisée. Les deux principales sources de flux GLO extérieur sont le ciel et le sol. Pour une paroi verticale en extérieur, on peut écrire le flux net GLO entrant.

$$\Phi_{GLO,e} = S . (\frac{h_{r,ciel}(T_{ciel} - T_s)}{2} + \frac{h_{r,sol}(T_{sol} - T_s)}{2}) \quad \text{(I.6)}$$

$h_{r,ciel}$ et $h_{r,sol}$ sont les coefficients d'échange radiatif du ciel et du sol, respectivement, et valent environ 5 $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$. T_{ciel} et T_{sol} sont les températures du ciel et du sol, respectivement. Plusieurs corrélations existent pour la détermination des températures de sol et de ciel et pour les coefficients d'échanges radiatifs [7], [8].

Dans le cas de la RT 2012, les coefficients d'échanges thermiques radiatifs et convectifs sont règlementés. On introduit alors un coefficient d'échange global entre les parois et l'ambiance extérieure ou intérieure qui tient compte du rayonnement GLO et de la convection. En l'absence d'informations spécifiques sur les conditions aux limites des surfaces planes, les valeurs suivantes doivent être utilisées :

Valeurs des coefficients d'échanges globaux ($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$)	Extérieur	Intérieur
Paroi horizontale – Flux ascendant	25	10
Paroi horizontale – Flux descendant	25	5,88
Paroi verticale	25	7,7

Tableau I.2-1 : Coefficients d'échanges globaux utilisés dans le cadre de la RT 2012

I.2.2 Transferts d'humidité

La plupart des matériaux utilisés dans le bâtiment sont des matériaux poreux perméables à la vapeur d'eau. Certains d'entre eux sont même hygroscopiques, c'est-à-dire qu'ils sont aptes à fixer l'humidité, ce qui peut modifier les propriétés physiques du matériau, notamment mécaniques et thermiques. Cela peut se traduire par l'augmentation de la conductivité thermique des isolants induisant alors un besoin de chauffage plus important, ou par une fragilisation structurelle de l'isolant qui limite alors sa durée de vie. L'humidité joue également un rôle dans le confort des occupants. Un excès ou un manque d'humidité dans les pièces à vivre peuvent être la cause d'inconforts. L'humidité peut également être à l'origine de condensation à la surface des parois ou à l'intérieur même des parois, et peut être propice au développement de moisissures. Il faut donc avoir conscience de ces phénomènes, tant pour l'occupant, que pour la pérennité du patrimoine immobilier et les prendre en compte dans les équations de transfert.

Le flux de chaleur, qui se traduit par une variation d'enthalpie du matériau, est dû à deux phénomènes distincts. D'une part, la densité de flux thermique est proportionnelle à la conductivité thermique et au gradient de température (loi de Fourier), et d'autre part au flux de chaleur transporté par le flux d'humidité qui peut être pris en compte en ajoutant un terme source. D'après la référence [9], le seul terme source non négligeable est celui lié au changement de phase.

La nouvelle équation du transfert de chaleur dans le matériau est la suivante :

$$\frac{\partial H}{\partial t} = \nabla(\lambda^*_H(w)\nabla T) + \hbar_e \nabla g_v \tag{I.7}$$

Le transport d'humidité se fait par l'intermédiaire de deux phases en présence : la phase liquide et la phase vapeur.

$$\frac{\partial w}{\partial t} = -\nabla(g_l + g_v) \tag{I.8}$$

où H représente l'enthalpie du matériau, $\lambda^*_H(w)$ la conductivité thermique effective du matériau humide, w la teneur en eau en masse par volume, $\hbar_e$ l'enthalpie massique d'évaporation, g_v et g_l les densités de flux de masse en phase vapeur et liquide, respectivement. Les calculs de g_v et g_l se font en utilisant la loi de Fick, à condition de connaître les coefficients de transfert de masse des matériaux, les champs de température et de teneur en eau. La conductivité thermique du matériau humide se trouve généralement de manière empirique, celle-ci est corrélée linéairement à la teneur en eau du matériau. Ainsi, elle est calculée de la manière suivante :

$$\lambda^*_H = \lambda^*_{sec} + K_H w \tag{I.9}$$

où λ^*_{sec} est la conductivité thermique effective du matériau sec, K_H le facteur de proportionnalité.

Les deux équations couplées chaleur/humidité se résolvent par des méthodes numériques, la plus connue étant le modèle HAMT [9] (combined Heat And Moisture Transfer).

I.2.3 Le confort thermique

Le confort thermique se définit comme un état de satisfaction du corps vis-à-vis de l'environnement thermique. Cette notion est subjective et dépend principalement de 6 paramètres: le métabolisme qui représente une production de chaleur d'environ 100 W, l'habillement qui agit comme une résistance thermique entre la peau et l'environnement, la température de l'air, la température moyenne des parois, l'humidité relative et la vitesse de l'air. L'homme est une machine thermique qui interagit en permanence avec son environnement thermique. Plus de 50 % des échanges de chaleur se font par convection avec l'air ambiant, 35 % concernent les échanges par rayonnement à la surface de la peau. Le reste est dû à la transpiration, la respiration ou aux pertes par contact.

I.2.3.a Modèle simple de confort thermique

Une approche simplifiée est de définir une température de confort ressentie que l'on appelle température opérative. Elle se définit comme la moyenne de la température radiative moyenne et de la température ambiante, pondérée par les coefficients de transfert thermique radiatifs et convectifs. Pour des vitesses d'air inférieur à 20 $cm \cdot s^{-1}$, ce qui est le cas à l'intérieur d'un

bâtiment, les coefficients de transferts thermiques radiatifs et convectifs sont proches, et la température opérative peut se définir avec la formule simplifiée suivante :

$$T_{op} = \frac{T_{air} + T_{RM}}{2} \tag{I.10}$$

avec T_{op} la température opérative, T_{air} la température résultante sèche, et T_{RM} la température radiative moyenne. C'est notamment cette définition qui est utilisée dans le cadre de la RT 2012. Cette approche est souvent utilisée en première approximation, mais fait l'impasse sur l'influence de l'humidité, du vent et du métabolisme propre à chacun. L'humidité influence notre corps à éliminer une chaleur excédentaire. Elle a relativement peu d'impact sur le confort d'un individu dans un bâtiment, mais un inconfort peut se faire ressentir en dehors de la plage d'humidité relative 30 % - 70 %. La vitesse du vent a une grande influence sur les échanges thermiques par convection et augmente l'évaporation à la surface de la peau. Le vent est considéré comme négligeable sur le confort des occupants lorsqu'il ne dépasse pas 0,2 $m \cdot s^{-1}$. Néanmoins, celui-ci peut être recherché en été pour abaisser la température du corps.

I.2.3.b Modèle conventionnel de confort thermique

Compte tenu de tous les paramètres agissants sur le confort thermique et de son caractère subjectif, des modèles plus complets ont été mis en place : le modèle Fanger [10], le modèle « Pierce two node »[11] ou le modèle KSU [12]. Ces modèles mettent en relation tous les paramètres de confort mentionnés précédemment avec différents environnements thermiques. Des études sur un large groupe d'individus dans ces environnements thermiques spécifiques permettent de déduire une plage de confort thermique ainsi que le pourcentage de personnes satisfaites. Le modèle le plus connu est celui de Fanger, il est basé sur deux variables : le PMV (Predicted Mean Vote) et le PPD (Predicted Percentage Dissatisfied). Le PMV est un indicateur de confort variant sur une échelle de -3 (froid) à +3 (chaud) construite à partir des données expérimentales recueillies par les individus sondés. En corrélant les données expérimentales avec les paramètres influents sur le confort thermique, Fanger développa une équation permettant de déduire le PMV dont voici la forme simplifiée :

$$PMV = (0{,}303e^{-0{,}36M} + 0{,}028)(M - L) \tag{I.11}$$

avec M l'activité métabolique ($W \cdot m^{-2}$), L correspond aux échanges de chaleur entre le corps et l'environnement ($W \cdot m^{-2}$).

Le PPD donne le pourcentage de personnes insatisfaites du confort thermique en fonction du PMV.

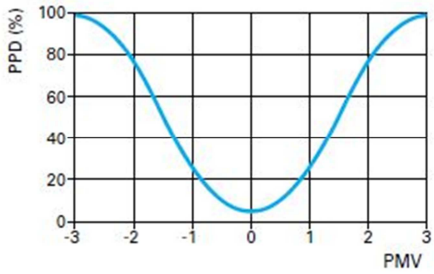


Figure I.2-1 : Relation entre le PPD et le PMV

On considère que la plage de confort thermique se situe entre un PMV de -0,5 et +0,5, ce qui correspond à un PPD de 10 %. Pour une valeur optimale de PMV, il reste encore 5 % d'insatisfaits.

Ainsi, à partir des 6 paramètres agissant sur le confort thermique, il est possible de visualiser une plage de confort optimale. À titre d'exemple, la Figure I.2-2 illustre la plage de température optimale selon la norme EN-15251 (PMV entre -0,65 et +0,65) pour les conditions suivantes : température radiante moyenne de 25 °C, vitesse de l'air de 0,1 $m \cdot s^{-1}$, individu debout avec habits d'été.

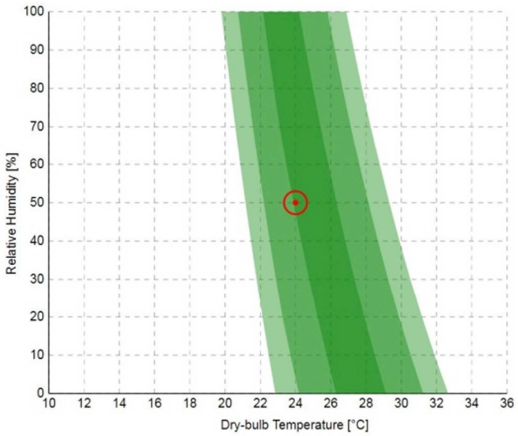


Figure I.2-2 : Plage de confort optimale selon la norme EN-15251, les teintes de verts correspondent à des sous-plages de confort.

I.2.3.c Modèle adaptatif

La méthode PMV a fait face à de nombreuses critiques pour la prédiction du confort car elle ne tient pas compte de la capacité d'action de l'occupant, de l'historique météorologique et de l'effet d'adaptation. La théorie du confort adaptatif a montré que la plupart des facteurs d'adaptation sont liés à la température extérieure et que, parmi les paramètres pris en compte dans le PMV, la température opérative est prédominante. Ainsi, plusieurs auteurs ont proposé une modélisation de la température de confort selon la forme suivante :

$$T_{conf} = A.T_{ext} + B \tag{I.12}$$

A est un coefficient de proportionnalité entre la température de confort et la température extérieure et varie en fonction de la température extérieure, B est une constante du modèle.

T_{ext} est la température extérieure en moyenne glissante calculée sur plusieurs jours. La Figure I.2-3 est un exemple de plage de confort adaptatif d'après la norme EN-15251. Les plages de confort sont construites autour de la valeur calculée de température de confort en y ajoutant/soustrayant quelques degrés pour fixer les bornes supérieures/inférieures de la plage de confort. Les différentes teintes de vert de la Figure I.2-3 correspondent à 85 %, 90 % et 95 % de personnes satisfaites par l'environnement thermique.

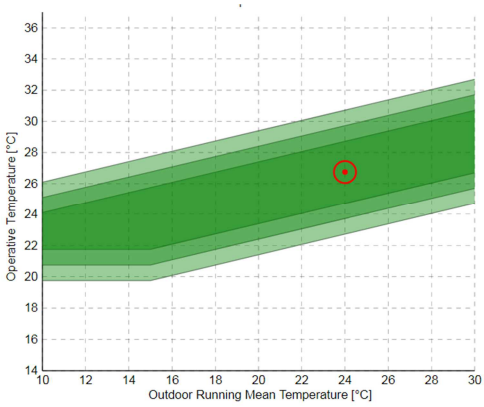


Figure I.2-3: Plage de confort adaptative selon la norme EN-15251

I.2.3.d L'indice de confort thermique

L'indice de confort thermique ou TCI (Thermal Comfort Index) est utilisé en complément des plages de confort définies par les méthodes Fanger (PMV) ou adaptatives. L'indice de confort thermique se base sur le principe de « degré heure » qui correspond au temps passé au-dessus (ou au-dessous) des températures de la zone de confort multiplié par l'écart entre la température intérieure et la température de la zone de confort. L'indice de confort thermique est calculé comme ci-dessous :

$$TCI = \sum (T_{conf} - T_{int}).\Delta t \tag{I.13}$$

avec T_{conf} la température la plus proche de la zone de confort thermique, T_{int} la température intérieure de la pièce et Δt l'intervalle de temps.

L'indice de confort thermique est calculé pour une période donnée et constitue un indice quantitatif simple pour savoir à quel point la température est loin de la plage de confort.

I.3 L'isolation thermique dans le bâtiment

I.3.1 L'enjeu de l'isolation thermique

L'utilisation d'isolants thermiques a pour but de faire baisser la consommation de chauffage en diminuant les déperditions thermiques à travers l'enveloppe du bâtiment. Le pouvoir isolant d'un matériau se définit à l'aide de sa résistance thermique R ($m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$) :

$$Q = (T_i - T_e)/R \tag{I.14}$$

$$R = \frac{d}{\lambda} \tag{I.15}$$

avec Q ($W \cdot m^{-2}$) les déperditions thermiques à travers l'enveloppe, T_i, T_e (°C) les températures intérieures et extérieures, respectivement, d (m) l'épaisseur du matériau isolant et λ ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) sa conductivité thermique. La conductivité thermique d'un matériau isolant est une propriété intrinsèque et dépend de sa nature chimique et de sa morphologie. La façon la plus économique d'augmenter le pouvoir isolant d'un matériau est d'augmenter son épaisseur, néanmoins ce n'est pas toujours possible et cela a le désavantage de réduire l'espace habitable dans le cas d'une isolation par l'intérieur. L'épaisseur de l'isolant peut être contrainte par la géométrie même du bâtiment ou par son architecture. La réduction de l'espace habitable devient de plus en plus problématique, surtout dans les grandes agglomérations à forte densité de population, où le prix du mètre carré atteint des prix très élevés. L'investissement d'un isolant dit « fin » dans cette situation devient alors rentable. Dans le cas où l'on souhaiterait tout de même atteindre un certain seuil de résistance thermique, il faut alors un matériau isolant dont la conductivité thermique soit la plus faible possible afin de respecter les contraintes d'épaisseur.

Outre les performances thermiques, un isolant doit également satisfaire de nombreuses autres contraintes lors de sa durée de vie. Il ne doit pas être inflammable pour des questions de sécurité et de toxicité, ne doit pas corroder les surfaces en contact, il doit être stable vis-à-vis de ses propriétés thermiques et mécaniques, notamment vis-à-vis de l'humidité et des cycles thermiques chaud/froid. D'autre part, leur mise en place doit être facile, leur prix de vente compétitif et leur impact écologique faible. En France, le programme ACERMI [13] permet de vérifier toutes les propriétés des isolants manufacturés et d'y donner une certification pour assurer des produits de hautes performances thermiques et énergétiques. La certification ACERMI propose cinq groupes de propriétés physiques regroupés sous le sigle ISOLE et permettant de classer les isolants selon différents niveaux de performance et d'aptitude à l'emploi. La signification de chaque groupe de propriétés physiques ainsi que leurs niveaux de performance est détaillée ci-dessous :

I	**Propriétés mécaniques en compression**
I1 : $\Delta d/d_0 \leq 0{,}25$ **I2** : C ≤ 12 mm **I3** : C ≤ 3 mm **I4** : C ≤ 0,5 mm **I5** : C ≤ 0,3 mm	$\Delta d/d_0$: déformation relative sous une pression de 100 Pa par rapport à une pression initiale de 50 Pa C : Perte d'épaisseur après l'application progressive d'une pression de 0,01 MPa jusqu'à 0,04 MPa
S	**Stabilité dimensionnelle**
S1 : $S_n + V_{HR} \leq 0{,}01$ m/m **S2** : $G.S_n.d \leq 400$ Pa · m **S3** : $S_f \leq 0{,}004$ m/m **S4** : $(50\alpha + V_{HR} + S_f)G \leq 15\ 000$ Pa	S_n(m/m) : Variation dimensionnelle naturelle irréversible, à 20 °C et 65 % HR par rapport à l'état initial de l'isolant. V_{HR}(m/m) : variation dimensionnelle irréversible sous l'influence de l'humidité (entre 20 °C à 15 % HR et 20 °C à 90 % HR) G (Pa) : Module de cisaillement S_f (m/m) : Variation dimensionnelle forcée irréversible, à 20 °C et 65 % HR après passage à la température de 70 °C pendant 7 jours α ($m \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) : Coefficient de dilation thermique
O	**Comportement à l'eau**
O1 : $\Delta d_H = (d_i\text{-}d_h)/d_i \leq 0{,}075$ u ≤ 15 % (en masse) u ≤ 1,5 % (en volume) **O2** : Isolant non hydrophile **O3** : Imperméabilité 24 h u ≤0,05 % (en volume)	d_i : épaisseur initiale, d_h : épaisseur après humidification partielle et séchage, u : variation de la quantité d'eau adsorbée par l'isolant à son état d'équilibre hydrique avec deux ambiances d'humidité relative conventionnelles (15 % HR et 90 % HR) à température constante (20 °C) Non-hydrophilie : aptitude de l'isolant placé au contact de l'eau à n'absorber celle-ci par gravité ou capillarité qu'en quantité considérée comme négligeable Imperméabilité : aptitude de l'isolant à ne pas être traversé par l'eau sous faible pression
L	**Propriétés mécaniques utiles en cohésion et flexion**
L1 : $F_L > 2P$ **L2** : D ≤ 0,12 m **L3** : $R_t \geq 0{,}05$ MPa, $A_r \geq 2\%$ **L4** : $R_t \geq 0{,}18$ MPa, $A_r \geq 1\%$	F_L(N) : Force de rupture par traction parallèle aux faces P (N) : Poids de 5 m d'isolant D(m) : Flexion sous poids propre R_t(MPa) : Résistance à la traction perpendiculaire aux faces A_r(%) : Allongement à la rupture
E	**Perméance à la vapeur d'eau**
E1 : P > 0,3 **E2** : 0,06 ≤ P < 0,3 **E3** : 0,015 ≤ P ≤ 0,06 **E4** : P ≤ 0,015	P ($g \cdot m^{-2} \cdot h^{-1} \cdot mmHg^{-1}$) : Perméance à la vapeur d'eau

Tableau I.3-1 : Propriétés ISOLE d'après la classification ACERMI

I.3.1.a Aspect économique

Un facteur important pour le choix et l'épaisseur de l'isolant est son coût d'investissement. Plus on isole (et donc plus on ajoute de l'épaisseur), plus la consommation en chauffage et climatisation diminue et avec lui le coût d'exploitation du bâtiment, mais plus le coût d'investissement est important (Figure I.3-1). Le coût d'investissement comprend une partie fixe qui dépend de la nature de l'isolant et de sa conception, et une partie variable proportionnelle à l'épaisseur. Le coût d'exploitation (chauffage/climatisation) est inversement proportionnel à la résistance thermique des parois et donc à l'épaisseur de l'isolant.

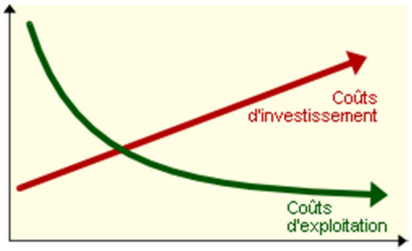


Figure I.3-1 : Coût d'investissement de l'isolant et coût d'exploitation en fonction de l'épaisseur de l'isolant

Dans la plupart des cas, c'est une logique de rentabilité financière qui détermine l'épaisseur de l'isolant et non une logique écologique. L'épaisseur dite « économique » se situe au croisement des courbes de coût, où le coût total atteint son minimum. Évidemment la courbe d'exploitation est également fonction de la période de retour sur investissement, ce qui change la valeur de l'épaisseur économique.

I.3.1.b La position de l'isolant

La position de l'isolant joue un rôle important sur le comportement dynamique d'une paroi. Le système d'isolation peut être placé côté extérieur, côté intérieur ou bien dans le mur structurant. L'isolation extérieure présente de nombreux avantages comme la continuité de l'isolation et va donc limiter la présence de ponts thermiques (Figure I.3-2) et les risques de condensation superficielle. D'autre part, l'isolation extérieure permet de tirer profit plus facilement de l'inertie thermique des murs structuraux, ce qui permet de réduire l'amplitude des températures journalières dans les locaux et le temps de variation de ces températures. Elle est donc particulièrement intéressante pour le confort d'été. Enfin, l'isolation par l'extérieur permet de ne pas réduire l'espace habitable et de ne pas déplacer les conduites et les appareils électriques, sanitaires et de chauffage dans le cas de la rénovation. L'isolation par l'intérieur permet quant à elle de ne pas modifier l'aspect extérieur du bâtiment, ce qui est fort utile pour la rénovation de monuments historiques ou d'immeubles classés (types haussmanniens).

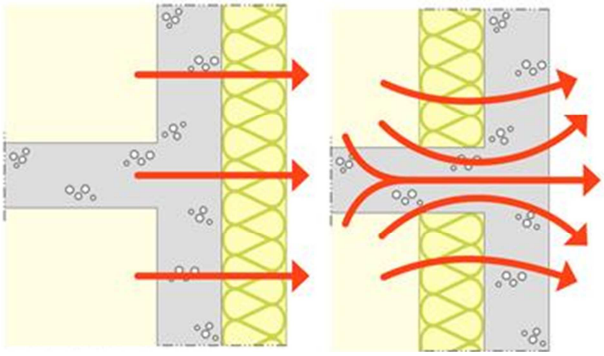


Figure I.3-2 : Effet de la position de l'isolant sur les ponts thermiques

I.3.1.c Performances à attendre du système d'isolation

i. *À l'échelle du mur*

La performance d'un isolant thermique se caractérise par sa conductivité thermique. Les isolants traditionnellement utilisés sont généralement des matériaux poreux avec une conductivité thermique inférieure à 0,060 $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$. Une fois cet isolant intégré dans la paroi, des mesures in situ permettent de déterminer l'efficacité thermique de la paroi en calculant le coefficient de transmission thermique U de la paroi, qui n'est autre que l'inverse de la résistance thermique. À la différence de la caractérisation « laboratoire » de l'isolant, la mesure de U tient compte, en plus des propriétés thermophysiques de la paroi, des résistances de contacts entre chaque couche de la paroi considérée, des ponts thermiques, et des échanges convectifs avec l'air. Les recommandations en termes de coefficient de transmission thermique des parois de la RT 2012, de la RT 2020, et de la RT existant sont présentées dans le Tableau I.*3-2*:

Paroi opaque	RT existant	RT 2012 neuf	RT 2020 neuf
Combles	U < 0,4	U < 0,125	U < 0,1
Murs	U < 0,45	U < 0,25	U < 0,2
Sols	U < 0,45	U < 0,25	U < 0,2

Tableau I.3-2 : Recommandations des RT existant, RT 2012 et RT 2020 sur les coefficients de transmission thermique des parois opaques

La pose de l'isolant doit également limiter les ponts thermiques car ils sont source de déperditions énergétiques du bâtiment, et peuvent représenter 15 % de celles-ci lorsqu'ils ne sont pas traités correctement. Le ratio de transmission thermique linéique moyen global des ponts thermiques du bâtiment ne doit pas dépasser 0,028 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, et le coefficient de transmission thermique linéique moyen des liaisons plancher intermédiaire/murs donnant sur l'extérieur ne doit pas dépasser 0,6 $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$. L'étanchéité à l'air de la paroi joue également un rôle primordial, car les fuites d'air à travers l'enveloppe du bâtiment sont synonymes de déperditions thermiques et donc de diminution de l'efficacité de l'isolant. Depuis la mise en

place de la RT 2012, tous les bâtiments neufs doivent être conformes vis-à-vis de l'étanchéité à l'air. Les parois (hors plancher) doivent avoir un débit de fuite d'air inférieur à 0,6 $m^3 \cdot h^{-1} \cdot m^{-2}$ pour les maisons individuelles et 1 $m^3 \cdot h^{-1} \cdot m^{-2}$ pour les habitations collectives. Enfin, la paroi doit empêcher la condensation interne en son sein et sur les surfaces intérieures et elle doit assurer l'étanchéité à l'eau de pluie. L'ajout d'un pare-vapeur permet d'éviter ces phénomènes de condensation, et garantit une étanchéité à la vapeur d'eau, à l'eau liquide et à l'air.

En plus du coefficient de transmission thermique, deux autres paramètres permettent de caractériser l'efficacité thermique d'une paroi : le déphasage ϕ et le facteur d'amortissement f. Le déphasage est le temps qu'il faut à l'onde thermique pour se propager à travers toute la paroi, et le facteur d'amortissement est la réduction d'amplitude de cette onde. Ces paramètres se calculent de la façon suivante :

$$\phi = t_{T_{si,Max}} - t_{T_{se,Max}} \tag{I.16}$$

$$f = \frac{T_{si,Max} - T_{si,Min}}{T_{se,Max} - T_{se,Min}} \tag{I.17}$$

avec $t_{T_{si,Max}}$ et $t_{T_{se,Max}}$ le temps où la température de surface intérieure/extérieure atteint son maximum. $T_{si,Max}$, $T_{si,Min}$, $T_{se,Max}$ et $T_{se,Min}$ sont la température de surface intérieure maximale/minimale et la température de surface extérieure maximale/minimale.

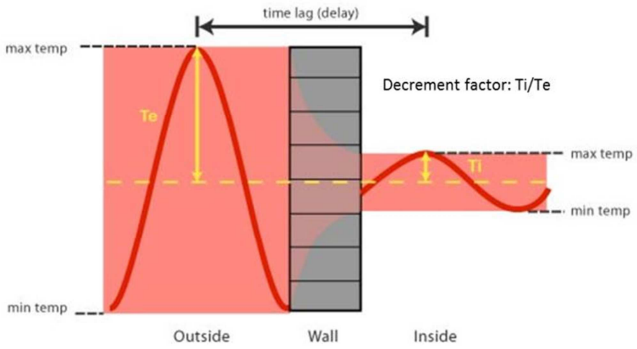


Figure I.3-3 : Déphasage et facteur d'amortissement d'un mur

Le calcul du facteur d'amortissement est sujet à débat car plusieurs définitions coexistent [14]. Certains auteurs le calculent en conditions « *Free-Floating* », sans régulation de température intérieure, tandis que d'autres le calculent en imposant une température intérieure fixe. De plus, selon les auteurs, la température de surface extérieure doit faire fi du rayonnement solaire, ou bien prendre en compte ce rayonnement solaire. Dans ce dernier cas, on définit alors le facteur d'amortissement avec la température sol-air au lieu de la température de surface extérieure. La température sol-air se définit comme une température équivalente telle que le flux de chaleur transmis dans la paroi soit le même que celui dû à l'effet combiné du rayonnement solaire et de la différence de température de part et d'autre de la paroi. Pour une paroi verticale, la température sol-air T_{sa} se calcule de la façon suivante :

$$T_{sa} = T_{ext} + \frac{\alpha_{CLO} \cdot I_{CLO}}{h_e} \quad (I.18)$$

α_{CLO} est le coefficient d'absorption du matériau en surface de la paroi pour les courtes longueurs d'onde, I_{CLO} est le flux thermique solaire arrivant sur la paroi et h_e le coefficient de transfert thermique global extérieur.

À la différence du coefficient de transmission thermique, le déphasage et le facteur d'amortissement permettent d'étudier la dynamique thermique du mur et de caractériser l'inertie thermique de la paroi qui joue un rôle important dans le confort thermique des occupants, en particulier l'été. L'inertie thermique d'un mur est corrélée aux propriétés physiques suivantes : conductivité thermique λ, chaleur spécifique c et masse volumique ρ. On distingue deux types d'inerties thermiques différentes qui concourent à l'amélioration et à la conservation du confort :

- Les parois qui séparent le climat extérieur et l'ambiance intérieure s'opposent aux transmissions des variations de températures extérieures grâce à l'inertie de transmission. L'inertie par transmission n'empêche pas la chaleur de transiter vers l'intérieur, mais ralentit sa propagation et son amplitude. Le ralentissement est tel que la chaleur arrive à l'intérieur bien après le pic d'ensoleillement maximal journalier, idéalement pendant la nuit lorsqu'il est possible d'évacuer la chaleur par ventilation nocturne. L'amplitude est diminuée par le fait qu'une partie de la chaleur transite vers la surface intérieure pendant qu'une autre partie revient vers la surface extérieure lorsque l'ensoleillement disparaît. L'inertie thermique de transmission est caractérisée par la diffusivité thermique a du mur. Elle est définie comme le ratio entre la conductivité λ thermique et la capacité thermique volumique ρc :

$$a = \lambda / \rho c \quad (I.19)$$

L'inertie thermique par transmission d'une paroi est d'autant plus importante lorsque sa diffusivité thermique est faible et que son épaisseur est importante. Ce sont généralement les isolants qui disposent des plus faibles diffusivités thermiques.

- La partie intérieure des parois ainsi que tous les objets intérieurs s'opposent aux variations rapides de température intérieure et stabilisent la température grâce à l'inertie par absorption. L'inertie par absorption n'est effective que lorsque la température intérieure varie. Lorsque celle-ci augmente, les murs absorbent de la chaleur jusqu'à obtenir une nouvelle situation d'équilibre thermique avec la pièce. À l'inverse, lorsque celle-ci baisse, le mur relâche de la chaleur stockée jusqu'à obtenir une situation d'équilibre. L'inertie thermique par absorption d'un mur est caractérisée par l'effusivité thermique Ê :

$$\hat{E} = \sqrt{\lambda \rho c} \tag{I.20}$$

Il caractérise la capacité d'un matériau à échanger de l'énergie thermique avec son environnement. L'inertie par absorption est d'autant plus efficace que l'effusivité thermique du matériau et sa surface sont importantes. Ce sont généralement les matériaux massifs qui sont les plus effusifs.

À la vue des équations précédentes, il n'est pas possible de maximiser à la fois l'inertie par transmission et l'inertie par absorption. La solution adéquate pour favoriser les deux types d'inertie simultanément est l'utilisation de matériaux extérieurs à faible diffusivité thermique et de matériaux intérieurs à forte effusivité thermique.

La plupart des approches pour déterminer le facteur d'amortissement et le déphasage sont analytiques ou numériques. La norme EN ISO 13786 [15] décrit les échanges thermiques d'une paroi en régime dynamique par le biais de formulations matricielles, qui sont par la suite utilisées pour le calcul du facteur d'amortissement, du déphasage, du coefficient de transmission thermique périodique et de la capacité thermique du mur. Dans la littérature récente, Gagliano et al. [16] ont utilisé cette méthode pour calculer le déphasage et le facteur d'amortissement d'un bâtiment historique localisé à Catane (Italie). Leurs résultats théoriques montrent cependant quelques différences avec leurs mesures expérimentales, avec notamment une surestimation du déphasage. Asan et al. [17], [18] ont étudié l'influence des propriétés thermophysiques du mur, son épaisseur, et la position de l'isolant sur le facteur d'amortissement et le déphasage. Kaşka et al. [19] et Yumrutaş et al. [20] ont calculé le facteur d'amortissement et le déphasage pour des murs multicouches en Turquie en transformant le problème de transfert thermique dynamique par analyse de Fourier. Kontoleon et al. [21] ont étudié les effets de l'orientation et l'absorptance solaire des parois par analyse nodale d'un modèle résistance-capacitance. Ulgen [22] et Mandilaras et al. [23] sont les rares auteurs à proposer une approche expérimentale. Le premier mesure le facteur d'amortissement et le déphasage d'un mur entre deux espaces conditionnés alors que le second réalise ses mesures en conditions *in situ*, intégrant le cycle de température et de rayonnement diurne réel sur un mur incluant un matériau à changement de phase.

ii. À l'échelle du bâtiment

Les RT 2012 et RT 2020 ont des exigences de résultats en matière de consommation moyenne énergétique des bâtiments neufs : respectivement 50 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ en énergie primaire et 0 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ en énergie primaire. Le chauffage est la source première de consommation énergétique dans un bâtiment et permet d'assurer le bien-être des occupants en maintenant la température des pièces dans la plage de confort thermique. Ce besoin énergétique est appelé « besoin net » et correspond à l'énergie que les systèmes de chauffage ou de refroidissement doivent fournir à la pièce afin de compenser les déperditions thermiques en hiver et les

surchauffes en été. Ce besoin net ne dépend pas des caractéristiques techniques des systèmes énergétiques, mais des caractéristiques structurales et géographiques du bâtiment. En hiver, les déperditions thermiques comprennent les pertes par transmission à travers l'enveloppe Q_{env} et les pertes par ventilation Q_V. Une bonne isolation thermique et une étanchéité à l'air des parois permettent de réduire grandement ces déperditions. En été, il s'agit de contrer les gains de chaleur que sont les apports solaires Q_S et les gains internes Q_i (occupants, équipements, éclairage). Un bon système de ventilation, une forte inertie thermique du bâtiment et un une occultation efficace des parois vitrées permettent de réduire les cas de surchauffe en été. Le besoin net se définit sur la base d'une température de consigne et vaut :

$$Q_{net} = (Q_{env} + Q_V) - (Q_S + Q_i) \tag{I.21}$$

Aucun système de chauffage ou de refroidissement n'a un rendement parfait car des pertes sont à prévoir lors de la conversion d'énergie en chauffage/refroidissement. On définit alors le besoin en énergie finale Q_f qui correspond à ce qu'il sera facturé par l'utilisateur.

$$Q_f = \frac{Q_{net}}{\eta_{instal}} \tag{I.22}$$

avec η_{instal} le rendement de l'installation de chauffage / refroidissement.

À titre d'exemple, le tableau ci-dessous liste les rendements globaux classiques d'installations de chauffage appelé aussi coefficient de performance (COP).

Installation	**Rendement**
Chaudière (gaz naturel)	60 -80 %
Pompes à chaleur eau/eau (électricité)	200-300 %
Électricité	95 %

Tableau I.3-3 : Rendement d'équipements de chauffage usuels

Enfin, l'énergie disponible utilisée par les systèmes de chauffage/refroidissement subit de multiples transformations avant livraison au consommateur. Afin de remettre tous les types d'énergie sur un pied d'égalité, on définit la notion d'énergie primaire E_P qui correspond à la première forme d'énergie disponible dans la nature avant toute transformation (bois, charbon pétrole, nucléaire, gaz, vent, soleil).

$$E_P = Q_f . F_c \tag{I.23}$$

avec F_c le facteur de conversion entre énergie finale et énergie primaire.
Les facteurs de conversion utilisés aujourd'hui en France sont les suivants :

- Pour l'électricité, $F_c = 2{,}58$
- Pour les combustibles fossiles et la biomasse $F_c = 1$

La Figure I.3-4 résume la chaine de l'énergie depuis l'énergie primaire disponible dans la nature jusqu'au besoin net avec les notations vues précédemment.

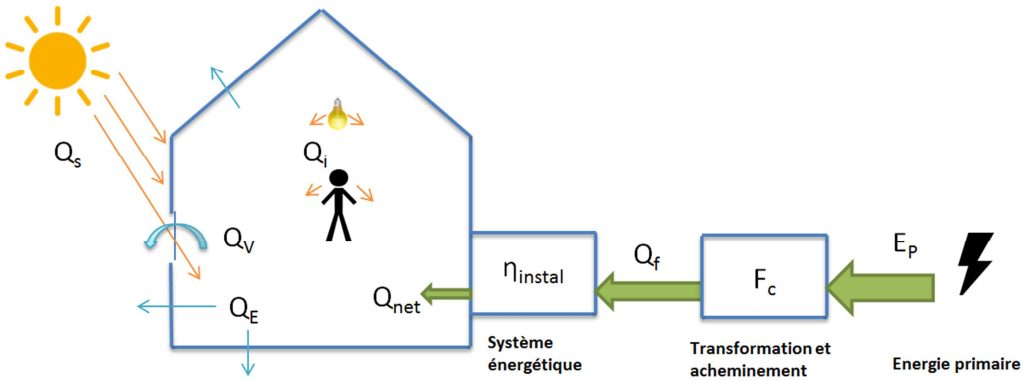


Figure I.3-4 : Chaine de l'énergie

I.3.2 Les isolants conventionnels

La plupart des isolants utilisés aujourd'hui dans le bâtiment sont des matériaux légers et poreux au travers desquels les transferts thermiques se font par conduction et rayonnement. Un matériau est considéré comme isolant lorsque sa conductivité thermique effective est inférieure à 0,07 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ à l'état sec. Classiquement, on distingue trois grandes familles d'isolant dans le secteur du bâtiment : les isolants synthétiques, les isolants d'origine minérale et les isolants dits « écologiques ».

I.3.2.a Les isolants synthétiques

Les isolants synthétiques sont des matériaux issus de la chimie du pétrole et du chlore produit à partir de matières non renouvelables selon des procédés énergivores. Ce sont généralement des matériaux à matrice solide contenant des cellules ouvertes ou fermées dans lesquels réside un gaz interstitiel ayant servi à l'expansion du matériau initial. On y retrouve les mousses de polyuréthane (PUR), de polystyrène (PS) ou encore phénolique (PF). Ils sont très intéressants d'un point de vue hygrothermique, mais ont un fort impact écologique et une faible résistance au feu. D'une part, leur énergie grise est importante, et d'autre part, ils relâchent des composés organiques volatils (COV) tout au long de leur vie et libèrent des gaz toxiques en cas d'incendie.

Figure I.3-5 : Mousse de polyuréthane (gauche) et mousse de polystyrène expansé (droite)

I.3.2.b Les isolants d'origine minérale

Les isolants d'origine minérale sont issus de matériaux abondants (roche, sable) et sont souvent composés de matériaux recyclés. On distingue deux sous-ensembles d'isolants d'origines minérales : les laines minérales et les isolants minéraux à proprement parler. Les laines minérales se présentent sous la forme de rouleaux ou panneaux de fibres minérales (roche ou verre) agglomérées parfois de faibles quantités de résines synthétiques. Ces laines minérales ont une bonne conductivité thermique, mais sont totalement perméables à l'air et à la vapeur d'eau. D'un point de vue mécanique, ces laines ont une très faible résistance au délaminage. Les isolants minéraux sont des matériaux cellulaires expansés à partir d'un matériau initial. On trouve dans cette catégorie le verre cellulaire, la perlite expansée et la vermiculite. Contrairement aux isolants synthétiques, les isolants d'origines minérales dégagent peu de COV et sont très résistants au feu. Leur impact écologique est plus faible, mais leur procédé de fabrication reste tout de même énergivore.

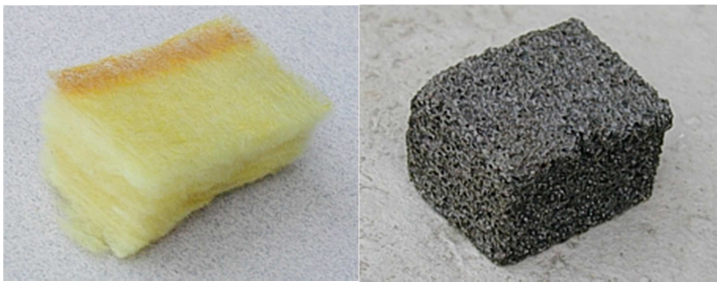


Figure I.3-6 : Laine de verre (gauche) et verre cellulaire (droite)

I.3.2.c Les isolants écologiques

Les isolants écologiques ne se basent pas uniquement sur les propriétés thermiques et économiques, mais également sur leur impact environnemental et leur impact sur la santé. Ils tiennent compte notamment de leur énergie grise, consommée sur l'ensemble du cycle de vie, de l'émission de gaz polluants ou de produits nocifs et de leur recyclage en fin de vie. On trouve comme isolants écologiques classiques les isolants à base de cellulose et les laines d'origines animales ou végétales (lin, bois, mouton).

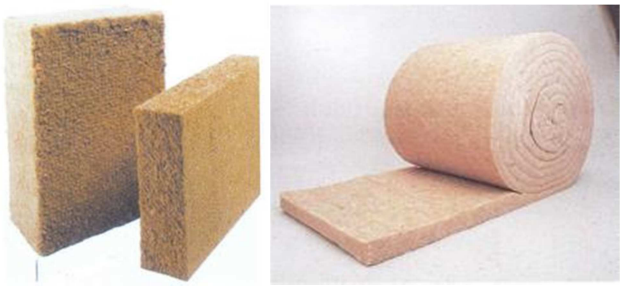


Figure I.3-7 : Panneaux de cellulose (gauche) et laine de lin en rouleaux (droite)

Les isolants écologiques ont généralement une conductivité thermique plus élevée que leurs pairs, mais ils s'inscrivent dans une démarche d'écoconception. Le Tableau I.3-4 résume les propriétés thermophysiques, le coût moyen, et l'énergie grise des isolants couramment utilisés.

Matériau	**Masse volumique ($kg \cdot m^{-3}$)**	**Conductivité thermique ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$)**	**Perméabilité à la vapeur d'eau (µ)**	**Résistance au feu**	**Coût ($€ \cdot m^{-2}$)**	**Énergie grise**
Polyuréthane	30	0,022	100	-	5-30	+++
Polystyrène expansé	15-40	0,045	20-150	-	5-15	+
Polystyrène extrudé	30-45	0,040	220	-	7 -25	++
Mousse phénolique	30-100	0,025-0,045	80	+	10-25	++
Laine de verre	10-60	0,03-0,045	1-2	+	5-20	+
Laine de roche	10-200	0,045	1-2	+	5-20	+
Verre cellulaire	120-140	0,055	infini	+	25-35	+++
Perlite expansée	140-200	0,060	5-10	+	20	+
Laine de cellulose	70-100	0,040	1-2	+	7-25	-
Panneau de lin	400-500	0,05-0,065	1-2	+	15	-
Panneau de liège	100-120	0,050	10-30	+	5-15	-
Laine de mouton	10-50	0,035-0,045	1-2	+	5-20	-

Tableau I.3-4 : Résumé des propriétés des principaux isolants utilisés dans l'isolation thermique du bâtiment

I.3.3 Les super-isolants

Les nouvelles exigences réglementaires sur la baisse de consommation des bâtiments nécessitent l'augmentation de la résistance thermique de l'enveloppe du bâtiment, et donc celle de l'isolant. Pour ce faire, on peut soit augmenter l'épaisseur d'isolant utilisé, soit trouver un moyen de diminuer sa conductivité thermique. Augmenter l'épaisseur est la solution la plus facile et la plus économique, mais présente certains inconvénients comme la diminution de l'espace habitable. L'espace perdu par l'ajout d'isolant est directement relié au prix foncier de l'habitation. Dans des villes à forte densité de population où le prix foncier est élevé, la perte d'argent engendrée par l'augmentation de l'épaisseur de l'isolant peut être très importante. À titre d'exemple, si l'on rénove avec de la laine de verre un appartement de 60 m^2 mal isolé ($R = 1{,}5\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$) afin d'atteindre les objectifs de la RT 2012 ($R = 4\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$), il

faudrait ajouter 10 cm d'isolant. Cela correspondrait à une perte d'espace d'environ 1,6 m^2 et à une perte foncière de 6 400 € à Nice, ou 14 000 € à Paris. Ces dernières années, une nouvelle classe d'isolant mince a vu le jour permettant d'assurer une bonne isolation thermique sans pour autant avoir une épaisseur trop importante. Il s'agit de la classe des « super-isolants » qui présentent une conductivité thermique inférieure à 0,020 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ en conditions ambiantes de pression et de température. À épaisseur égale, les super-isolants offrent une amélioration conséquente en terme d'isolation thermique, mais leur coût de vente est encore très élevé. Néanmoins, en intégrant l'espace habitable gagné dans le coût global, ils deviennent de sérieux concurrents aux isolants conventionnels. Aujourd'hui, leur utilisation reste encore limitée à un marché de niche pour des applications qui nécessitent un gain de place : traitements des ponts thermiques, rénovation de bâtiments historiques ou façades fines. L'intérêt économique des super-isolants devrait s'améliorer dans le futur avec l'accroissement de la production et l'amélioration des procédés de fabrication. Deux grandes familles super-isolantes se disputent le marché aujourd'hui : les panneaux d'isolation sous vide (PIV) et la famille des super-isolants à pression ambiante dont fait partie l'aérogel de silice. La Figure I.3-8 montre l'épaisseur d'isolant nécessaire pour quelques isolants afin d'obtenir une résistance thermique de paroi égale à 4 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$.

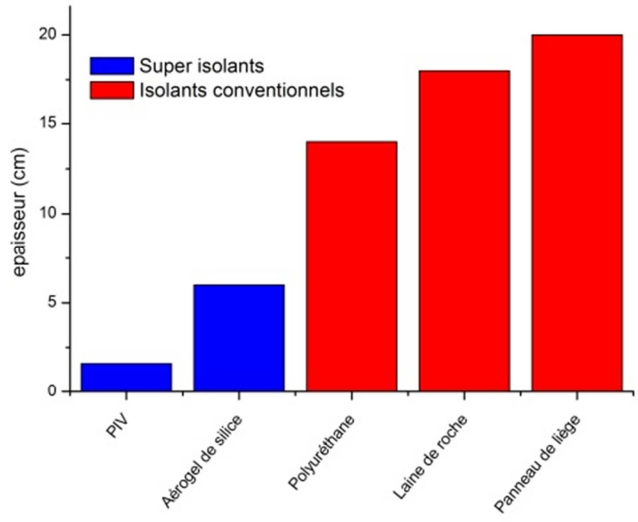


Figure I.3-8 : Épaisseur d'isolant nécessaire pour atteindre une résistance thermique de 4 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$, requise en France pour atteindre les bâtiments basses consommations selon la RT 2012.

I.3.3.a Les panneaux d'isolation sous vide

Les panneaux d'isolations sous vide (PIV) sont la classe de super-isolant la plus mature technologiquement. Ils ont fait leur apparition sur le marché il y a une vingtaine d'années et sont aujourd'hui commercialisés par plusieurs fabricants. On peut citer les produits connus dans le domaine de l'isolation thermique du bâtiment : SlimVac de Microtherm, SwissporVIP de Swisspor, ou bien Vacupor de ISOLproducts.

Les PIV sont composés d'un cœur poreux enveloppé par une barrière imperméable à l'air et à la vapeur d'eau.

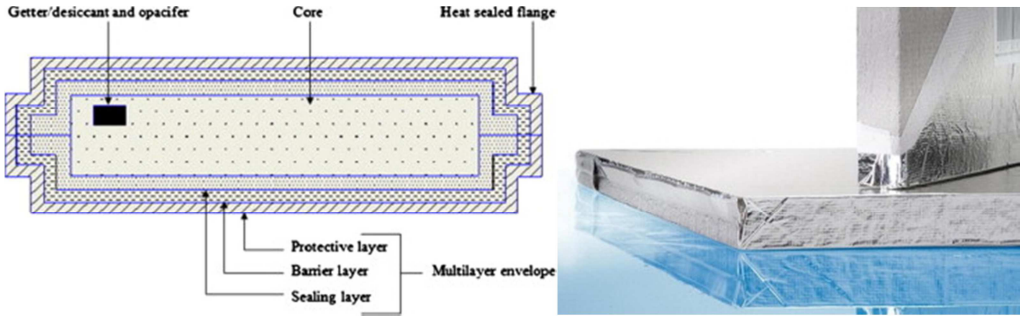


Figure I.3-9 : Panneaux d'isolation sous vide [24]

Le cœur dispose d'une structure poreuse ouverte afin de pouvoir en évacuer l'air et d'y créer un certain niveau de vide. Initialement, le cœur sous vide a une conductivité thermique de l'ordre de 0,004 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, mais celle-ci augmente avec le temps à cause de la diffusion d'air et de vapeur d'eau à travers la barrière protectrice. Le cœur généralement utilisé dans les produits commerciaux est la silice pyrogénée. Elle est produite sous forme de poudre à partir de la pyrolyse du $SiCl_4$. La barrière est constituée de multicouches d'aluminium et de polyéthylène téréphtalate d'épaisseur totale 100 microns. Son rôle est primordial car elle doit maintenir le niveau de vide dans le matériau cœur tout au long de la durée de vie du produit. Cependant, on observe qu'au fil du temps, la barrière protectrice n'empêche pas totalement la migration d'air et de molécules d'eau qui viennent dégrader la conductivité thermique du cœur. La Figure I.3-10 montre la dégradation de la conductivité thermique de PIV au cours du temps pour différents types d'enveloppe.

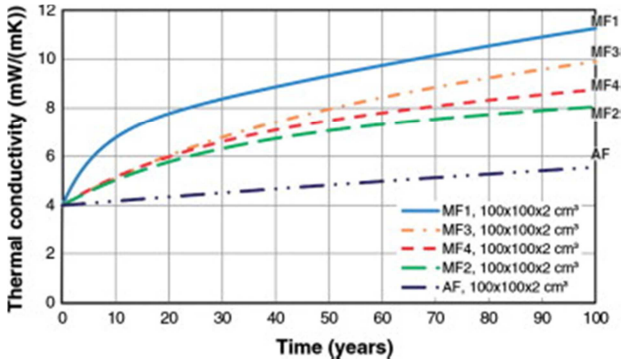


Figure I.3-10 : Conductivité thermique des PIV au cours du temps, (MF : Multilayer Foil, AF = Aluminium Foil) [25].

On voit qu'au bout de 20 ans, les performances thermiques peuvent être divisées par deux. À cela s'ajoute les risques de perforation de l'enveloppe et le manque de flexibilité quant à la pose sur site.

I.3.3.b Les super-isolants à pression ambiante

Dans le cas des PIV, la faible conductivité thermique est obtenue grâce à la suppression de l'air dans le système isolant. Le transfert thermique au sein du matériau s'effectue par rayonnement et par conduction au travers du cœur solide de l'enveloppe. La conduction gazeuse, qui représente 90 % du transfert thermique des isolants conventionnels, est totalement supprimée.
La famille des super-isolants à pression ambiante doit sa faible conductivité à sa structure mésoporeuse ouverte (pores entre 2 et 50 nm) qui gêne le transfert thermique par conduction gazeuse. Ces pores, dans lesquels réside l'air, possèdent une taille inférieure au libre parcours moyen des molécules d'air (72 nm en conditions normales). Dans ce cas, nous sommes en présence d'un transfert thermique dit en régime de raréfaction. La transmission de l'énergie d'agitation thermique des molécules est considérablement diminuée suite aux chocs contre les parois des pores. Actuellement, la famille de super-isolants à pression ambiante la plus étudiée est celle des aérogels, qui présente des conductivités thermiques aussi basses que 0,014 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Leurs propriétés et leur élaboration seront discutées dans le chapitre suivant.

I.4 Les aérogels de silice

I.4.1 Histoire des aérogels de silice

I.4.1.a Découverte et premiers travaux par Kistler

Le terme aérogel a été initialement introduit par Kistler en 1932 pour désigner les gels dont il avait remplacé la phase liquide par un gaz, sans effondrement de structure [26]. Jusque-là, les gels étaient toujours séchés par simple évaporation, mais Kistler employa une nouvelle méthode de séchage dit « séchage supercritique » dans laquelle le liquide est d'abord amené dans un état de fluide supercritique, puis est extrait du gel. En pratique, le séchage supercritique consiste à chauffer le gel en augmentant la pression dans un autoclave jusqu'à ce que sa phase liquide dépasse le point de température et de pression critique. Cette procédure permet d'empêcher la formation de ménisques liquide/vapeur dans les pores, qui sont responsables d'une pression contre les parois des pores. Lors du séchage évaporatif, cette pression capillaire cause l'effondrement de nombreux pores et induit un rétrécissement du gel séché jusqu'à 30 % de son volume initial ; le matériau obtenu est appelé « xérogel ». Le séchage supercritique permet d'évacuer le fluide supercritique tel un gaz, et permet d'obtenir, à la fin du processus, la partie solide du gel telle qu'elle était avant séchage. Le matériau ainsi obtenu est appelé aérogel et comporte une structure poreuse ouverte dont la proportion volumique de pores est généralement supérieure à 90 %, et a une conductivité thermique de l'ordre de 0,015 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. La Figure I.4-1 illustre la structure poreuse d'un aérogel de silice, elle comporte des mésopores (pores de 2 à 50 nm) et des micropores (pores inférieures à 2 nm).

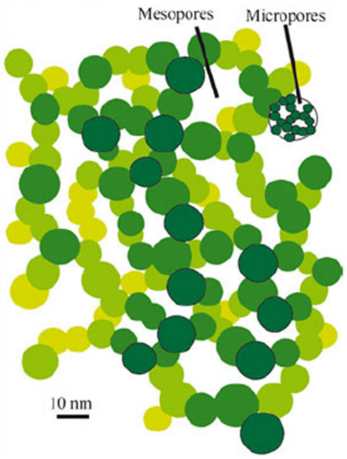


Figure I.4-1: Structure poreuse d'un aérogel de silice

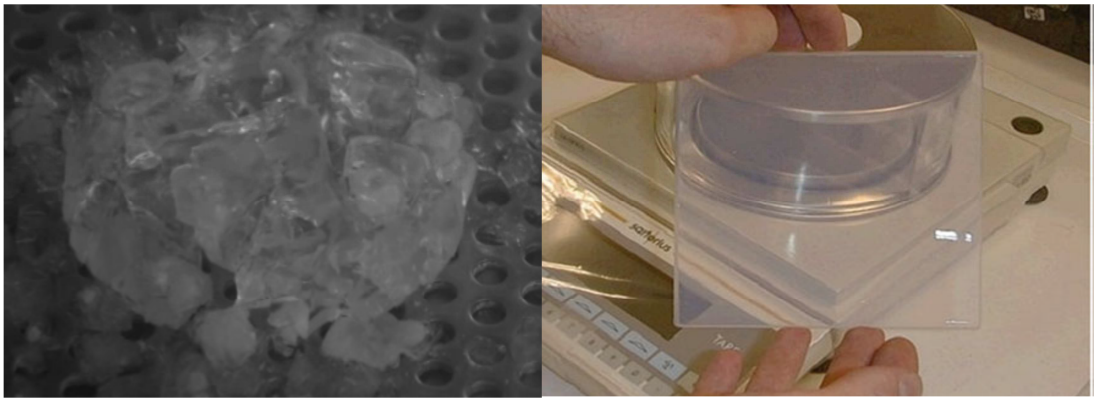


Figure I.4-2: Apparence d'un xérogel de silice après séchage ambiant (gauche) et d'un aérogel de silice après séchage supercritique (droite). Laboratoire PERSEE, Mines ParisTech.

Initialement, les aérogels de silice étaient synthétisés à partir de silicate de sodium Na_2SiO_3, appelé communément « *waterglass* » en présence de solvant aqueux. Cependant, l'eau contenue dans les pores du gel s'avérait transformer le gel en poudre lorsque les conditions étaient proches du point critique de l'eau. Afin de conserver un aspect monolithique, Kistler remplaça l'eau par de l'éthanol après formation du gel et initia ainsi le séchage supercritique dans cet alcool. Au-delà de l'aérogel de silice, Kistler synthétisa également des aérogels de différentes natures : alumine, ferrique, oxyde d'étain ou nickel, cellulose, etc.

Dans les années qui suivirent ses premiers travaux, Kistler déposa plusieurs brevets : un en collaboration avec Monsanto Chemical Company qui marqua la première production à grande échelle d'aérogels de silice commercialisés sous le nom de Santocel [27], un autre sur le premier aérogel de silice hydrophobe [28].

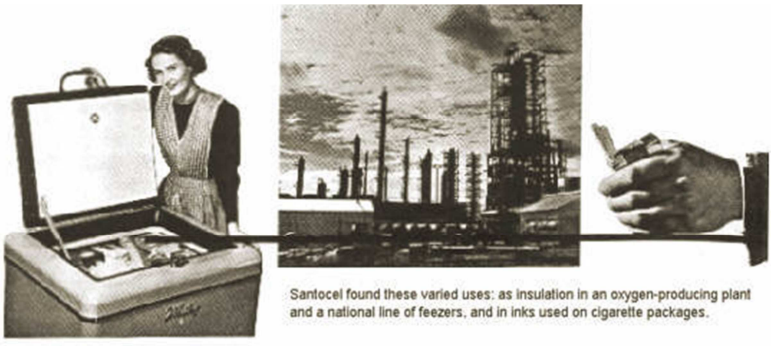


Figure I.4-3: Publicité pour Santocel, un produit de Monsanto basé sur les aérogels (1941)

I.4.1.b Les avancées de la synthèse des aérogels

Dans les années 1960, les aérogels ont connu un regain d'intérêt avec les progrès de la chimie sol-gel. Les travaux de Peri [29] ont permis de substituer les précurseurs de Na_2SiO_3 initialement utilisés par Kistler par des précurseurs alkoxydes (Si-$(OR)_4$) et il fut le premier à ouvrir la route avec les précurseurs de methoxysilane (TMOS) et tetraethoxysilane (TEOS) ; ce dernier est encore aujourd'hui largement préféré. En mélangeant des précurseurs TMOS avec de l'alcool, de l'eau et un catalyseur, Teichner et al. [30] ont pu diminuer le temps de

fabrication d'un aérogel de quelques semaines à quelques heures seulement. En effet, la mixture obtenue ne nécessite pas de longs rinçages pour extraire le sel issu du Na_2SiO_3 (dans le cas de la méthode *waterglass*), et la réaction d'hydrolyse entre le groupe methoxysilanol et l'eau produit du méthanol, ne nécessitant pas de longs et fastidieux changements de solvant avant le séchage supercritique.

Dans les années 1980, la première production à grande échelle d'aérogel de silice à partir du TMOS a été mise en place par des membres de l'université de Lund en Suède. Les installations comprenaient des autoclaves de 3 000 litres dimensionnés pour assurer le séchage supercritique du méthanol (240 °C et 80 bars). En 1984, suite à une fuite d'un autoclave lors de la production, la pièce se remplit de vapeur de méthanol et explosa soudainement. Après cet incident, la communauté aérogel commença à réfléchir à des moyens de production d'aérogel plus sûrs. Simultanément, le Dr Hunt du groupe Microstructured Material (États-Unis) et des scientifiques du groupe BASF (Allemagne) ont découvert que le méthanol dans le gel pouvait être substitué par du dioxyde de carbone liquide avant l'étape de séchage supercritique. Le dioxyde de carbone liquide s'avère être non toxique, ininflammable et ne modifie en rien la structure de l'aérogel. Cela représente une avancée majeure dans la sûreté de fabrication et dans l'énergie grise du matériau puisque le point critique du CO_2 (31 °C, 73 bars) apparaît dans des conditions bien moins sévères que celui du méthanol. Au même moment, le Dr Hunt découvrit que les précurseurs TMOS pouvaient être remplacés par des précurseurs TEOS, bien moins toxiques que les premiers, sans dégrader la qualité finale de l'aérogel. Grâce à ces dernières avancées, de nombreuses universités et entreprises, parmi lesquelles la NASA et le laboratoire National Lawrence Livermore de Berkeley, commencèrent à déceler un fort potentiel d'application dans les aérogels et devinrent leader dans la synthèse des aérogels. Pekala [31] étendit la synthèse des aérogels inorganiques aux aérogels organiques faits à partir de résorcinol-formaldéhyde ou de mélamine-formaldéhyde. Leur pyrolyse permet par la suite d'obtenir des aérogels de carbone purs conducteurs d'électricité, qui ont ouvert un tout nouveau domaine d'application dans le stockage d'énergie par voie électrochimique.

I.4.1.c Les nouvelles techniques

Les années 1990 voient la popularisation des aérogels grâce aux travaux de la NASA et à internet. Les applications potentielles dans l'isolation thermique et le stockage d'énergie intéressent les industriels, mais le séchage supercritique demeure un inconvénient majeur dans l'industrialisation à grande échelle puisqu'il s'agit d'un long procédé discontinu qui ne permet de sécher que des lots individuels de matériau. Chaque lot de matériau doit être transféré dans un autoclave dans lequel le solvant est échangé avec du CO_2 liquide, puis séché en conditions supercritiques, et enfin enlevé du réacteur afin de laisser la place au prochain lot de matériau. Aujourd'hui encore, il n'y a pas d'installations de séchage supercritique fonctionnant en continu qui soient utilisées pour la production et cela représente un frein dans l'industrialisation

moderne des aérogels. De plus, le séchage supercritique nécessite de fortes pressions (73 bars pour le CO_2) et des coûts élevés d'installation et de maintenance.

En 1992, des chercheurs de l'université du Nouveau Mexique ont réussi à s'affranchir du séchage supercritique lors de la production d'aérogels de silice [32]. Leur technique consiste d'abord à rendre hydrophobe le squelette du gel par modification chimique de sa surface interne. Le gel ainsi modifié est séché en conditions ambiantes (25-50 °C, 1 bar) et s'effondre partiellement, mais contrairement au gel non hydrophobe, la surface modifiée résiste aux contraintes capillaires et empêche les particules de silice de s'écraser les unes contre les autres. Une deuxième étape de séchage (150°C -200 °C, 0 bar) permet au matériau de retrouver jusqu'à 85 % de son volume initial grâce à l'effet « *spring back* » [33]. Le fruit de ces travaux a mené à l'industrialisation des premiers aérogels de silice à bas coût sous forme de granulat par les sociétés Nanopore, Cabot, Dow Corning (États-Unis) et Hoeechst (Allemagne). Cabot se distingua en rachetant les brevets sur le séchage ambiant de ses concurrents pour les ajouter aux siens et commença la production à grande échelle de granules d'aérogel de silice transparent connu sous le nom de Nanogel. Dans les années qui suivirent, les techniques de séchage ambiant se multiplièrent avec l'utilisation de nouveaux agents hydrophobants. Haereid et al. [34] démontrèrent qu'en faisant vieillir les gels dans une solution alkoxyde/alcool, la microstructure du squelette était renforcée et pouvait éviter son effondrement lors du séchage ambiant. Bhagat et al. [35] ont montré plus tard qu'en utilisant du methyltrimethoxysilane (MTMS) en tant que précurseur, le squelette de silice devenait plus flexible et pouvait résister aux contraires capillaires lors du séchage ambiant. Bien que ces matériaux soient obtenus par séchage ambiant, on ne les appelle plus « xérogels » comme le préconisait la définition originale, mais « aérogel via séchage à pression ambiante », car leur structure poreuse est conservée après séchage. En 1996, une nouvelle technique de synthèse utilisant le séchage supercritique est mise au point afin d'accélérer la production (appelée « Rapid SuperCritical Extraction »[36]). L'idée étant de produire l'aérogel en une seule étape. Un sol, non gélifié, est injecté dans un moule fermé, mais non scellé. Ce moule est ensuite placé dans un autoclave rempli de méthanol (ou d'éthanol) dont on augmente rapidement la température pour y atteindre les conditions supercritiques. La contrainte du moule et le chauffage rapide empêchent les déformations du gel et réduisent ainsi les tensions dans tout le monolithe. En conditions supercritiques, le fluide contenu dans le gel et celui à l'extérieur du moule peuvent s'échanger librement à travers le couvercle du moule et le système peut être dépressurisé de manière isotherme pour obtenir un aérogel. Grâce à cette méthode la production d'un lot aérogel dure moins de 4 heures en tout.

I.4.1.d Des aérogels pour la super isolation thermique

Compte tenu de la très faible conductivité thermique de l'aérogel, l'une de ses applications les plus prometteuses est l'isolation thermique. À la fin des années 1990, la NASA utilisa de l'aérogel monolithique pour l'isolation thermique d'équipements électroniques de son rover

martien. Cependant, le caractère extrêmement fragile de l'aérogel l'empêche de se faire une place sur le marché de l'isolation thermique. En 2001, la start-up Aspen Aerogels développa un matériau aérogel composite flexible (appelé *blanket*) en imprégnant un gel de silice dans un réseau fibreux, puis en séchant le tout par CO_2 supercritique. La firme développa toute une gamme de produits : pour l'isolation thermique du bâtiment (*Spaceloft®*), les applications cryogéniques (Cryogel®) et hautes températures (Pyrogel®), ou encore sous-marines (Spaceloft® Subsea) [37]. Quelques années plus tard, Cabot développa son propre *blanket* (ThermalWrap™) mais celui-ci utilise un mix de séchage supercritique/ambiant. Les deux compagnies se partagent presque exclusivement le marché des aérogels pour la super-isolation thermique.

Aujourd'hui, les recherches se concentrent sur la réduction de temps et de coût de fabrication des aérogels, ainsi que sur les méthodes d'amélioration de leurs propriétés mécaniques. On citera ici les plus connues:

- Aérogels composites élaborés par imprégnation de mousse, réseau fibreux, par dispersion de particules [38], de poudre [39],de nanofibres [40] ou de polymères [41].
- Aérogels hybrides silice/organique synthétisés par « cogélation » et « crosslink » [42].

I.4.2 Synthèse des aérogels de silice

Après des années d'évolution de la synthèse des aérogels de silice, deux méthodes sont aujourd'hui couramment utilisées : la synthèse « historique » à partir du silicate de sodium, et la synthèse « moderne » à partir du TEOS.

Les deux méthodes font intervenir la chimie sol-gel, qui réfère à un processus de synthèse dans lequel des nanoparticules solides dispersées dans un liquide (le sol) s'agglomèrent ensemble pour former un réseau tridimensionnel continu dans le liquide (le gel).

La chimie sol-gel fait intervenir un certain nombre de termes techniques qui sont définis ci-dessous :

- **Un colloïde** est une mixture dans laquelle au moins deux phases (solide, liquide ou gaz) sont mélangées à l'échelle nanométrique. Il comporte une phase continue dans laquelle est dispersée une autre phase. Les colloïdes diffèrent des solutions homogènes car les composants des colloïdes sont des nanoparticules ou macro molécules de 1 à 1000 nm.
- **Un sol** est un colloïde dans lequel la phase continue est liquide et la phase dispersée est solide. L'aspect d'un sol est liquide.
- **Un gel** est un réseau tridimensionnel de nanoparticules solides interpénétré dans un liquide. On parle d'hydrogel lorsque ce liquide est l'eau, d'alcogel pour un solvant alcool et d'organogel pour un solvant organique.
- **Une transition sol-gel** est le passage de l'état de sol à celui de gel. Les nanoparticules solides dispersées dans le sol forment un réseau tridimensionnel par

réaction de condensation. Cette transition s'achève à la percolation du réseau solide de nanoparticules.

- **Un aérogel** est essentiellement le réseau solide du gel, évacué de sa phase liquide. Lorsque l'extraction de la phase liquide du gel est effectuée en conditions ambiantes, elle cause un effondrement du réseau solide, on parle alors de xérogel.

I.4.2.a Voie silicate de sodium

La voie silicate de sodium – ou *waterglass* - est la synthèse dite « historique », ce fut celle initialement utilisée par Kistler. Les précurseurs utilisés sont à base de silicate de sodium, un solide blanc et peu cher, qui se décline en métasilicate de sodium Na_2SiO_4, polysilicate de sodium $(Na_2SiO_3)_n$, orthosilicate de sodium Na_4SiO_4, etc.

Le silicate de sodium est initialement dissous dans l'eau pour obtenir un sol appelé « water glass ». En neutralisant le silicate de sodium avec de l'acide chlorhydrique, une réaction d'hydrolyse s'amorce formant ainsi les groupements silanols libres Si-OH et du sel. Une fois les réactions d'hydrolyse terminées, les groupements Si-OH surmontent les interactions électrostatiques répulsives et forment des ponts siloxanes par réaction de condensation, qui par la suite formeront le réseau tridimensionnel du gel (hydrogel). Dans le cas de la méthode *waterglass*, le sol a parfois besoin d'être chauffé pour accélérer la transition sol-gel.

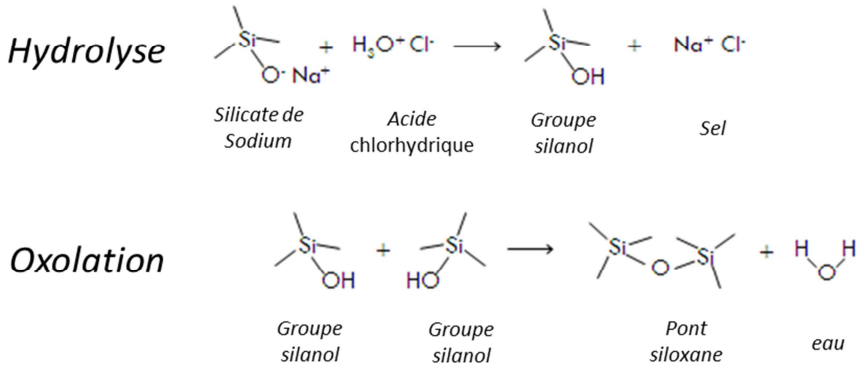


Figure I.4-4: Réactions principales lors de la formation du gel de silice suivant la méthode *waterglass*

L'avantage de la méthode *waterglass* est le bas coût de ses précurseurs de silicate de sodium, présents abondamment dans la nature, telle que la balle de riz, déchet agricole riche en silice [41], [42]. Néanmoins, lors des réactions d'hydrolyse, du sel est produit et doit être éliminé lors de longues et fastidieuses étapes de rinçage rendant le processus global finalement assez coûteux.

I.4.2.b Voie alkoxyde

La synthèse « moderne » fait appel à des précurseurs alkoxydes de silice Si – $(OR)_4$, ou R et OR sont respectivement des groupes alkyles et alkoxydes. R est généralement un groupe éthyle C_2H_5 ou méthyle CH_3 et leurs précurseurs respectifs sont le tétraméthoxysilane (TMOS) et le

tetraethoxysilane (TEOS). Ces précurseurs ont la particularité d'avoir une liaison Si-O à 50 % covalente, d'après la description de Pauling [45], responsable de la formation du réseau tridimensionnel aléatoire. Les précurseurs servent ici de source pour la silice, et l'ajout d'eau en tant que réactif permet aux molécules d'alkoxyde de se lier entre elles. Un catalyseur est généralement ajouté pour accélérer la formation des liaisons chimiques. Les catalyseurs acides couramment utilisés sont le HCl ou des acides carboxyliques, et les catalyseurs basiques sont du NH_3 ou des bases de Lewis. Les réactions principales qui gouvernent la formation du gel sont l'hydrolyse et la condensation entre les groupements silanols suivant deux mécanismes : l'oxolation (élimination d'eau) et l'alcoxolation (élimination d'une molécule d'alcool). Elles permettent la création de ponts siloxanes qui sont à la base du réseau structuré du gel (alcogel).

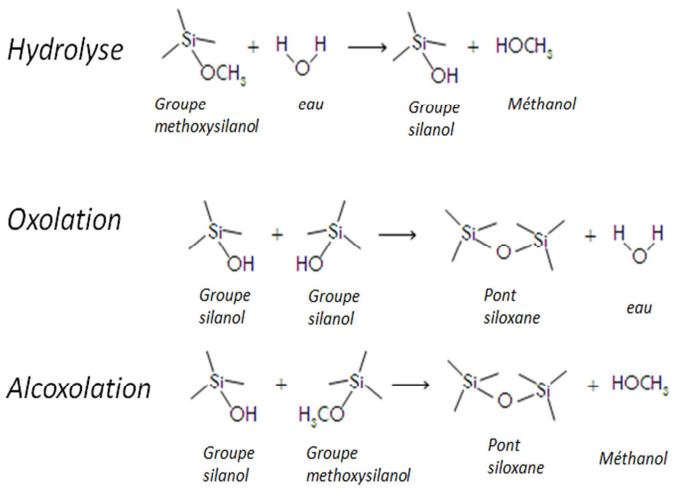


Figure I.4-5: Réactions principales lors de la formation du gel de silice suivant la méthode alkoxyde

La méthode alkoxyde est encore aujourd'hui la plus utilisée car elle présente la chimie la plus directe pour obtenir un gel. Cependant, son inconvénient majeur reste le coût de ses précurseurs avec 2,5 €/L pour le TEOS et 12,5 €/L pour le TMOS, auquel s'ajoute le prix de l'agent hydrophobant.

Remarque : Lors des deux types de synthèse, certains atomes de silice ne participent pas à la formation de ponts siloxanes, et finissent avec un ou plusieurs groupes hydroxyles OH ou alkoxydes OR. La grande majorité est composée de groupes hydroxyles n'ayant pas réagi lors de l'étape de condensation, et le reste étant les groupes alkoxydes n'ayant jamais été hydrolysés ou bien qui se sont reformés après hydrolyse.

I.4.2.c Vieillissement

À l'issue de l'une des deux méthodes, le gel ainsi formé a une structure spongieuse, avec des pores de très petite taille. La structure du gel formé est influencée par de nombreux paramètres

de synthèse tels que le choix du catalyseur et du solvant, le ratio molaire précurseurs/eau ou la concentration des précurseurs. Ces paramètres influent notamment sur la taille des nanoparticules, la distribution de taille de pores, la fractalité, la tortuosité du réseau de silice, ainsi que la densité finale du matériau.

L'étape de vieillissement intervient directement après la transition sol-gel via différents procédés. Le but de cette étape est d'améliorer les propriétés mécaniques du réseau de silice en tirant profit des mécanismes de synérèse et de mûrissement d'Ostwald lors de la modification de composition de la phase liquide. En ajoutant de l'eau ou du TEOS/TMOS (voie alkoxyde), les réactions de condensation et de dissolution/reprécipitation peuvent se poursuivre, notamment avec les groupes hydroxyles et alcoxydes résiduels. D'une part, les plus petites particules se dissolvent et se reprécipitent en de plus grosses particules (mûrissement d'Ostwald) et d'autre part les réactions de condensation qui se poursuivent après la transition sol-gel conduisent à un retrait volumique homogène du gel (synérèse) qui mène à l'exsudation d'une partie du liquide à travers les pores. Suite aux mécanismes de vieillissement, les zones de contact entre nanoparticules, la taille moyenne des pores et la densité du matériau sont augmentées. Ces changements texturaux peuvent être plus ou moins accentués en fonction du pH de la solution, de la température, du solvant utilisé ou bien du temps de vieillissement [46]. Il en résulte une amélioration significative des propriétés mécaniques du matériau : module de Young, module de cisaillement, limite à la rupture en flexion [47].

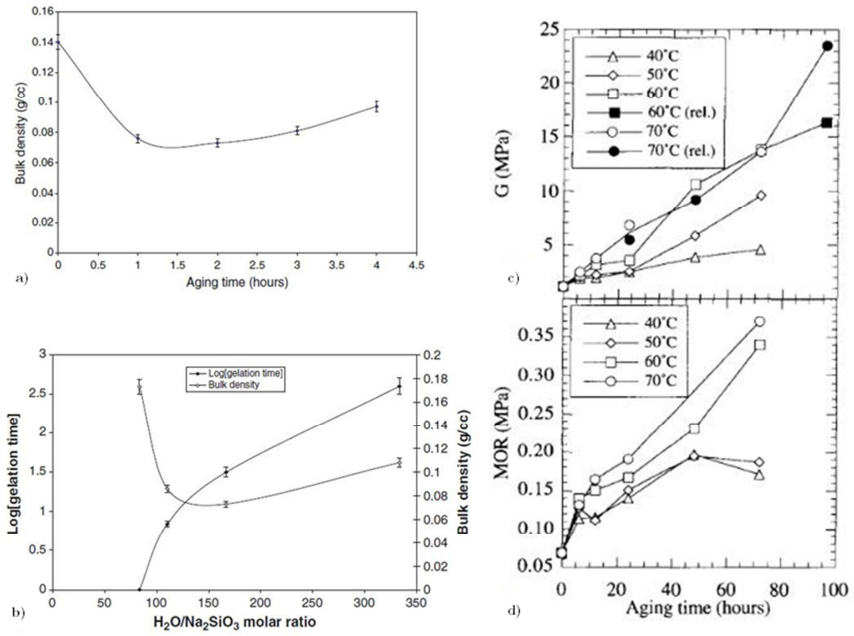


Figure I.4-6 : a) Effet du temps de vieillissement sur la densité finale du matériau (voie silicate de sodium), b) Effet du ratio molaire précurseurs/eau sur la densité finale du matériau et le temps de transition sol-gel (voie silicate de sodium), c) Effet du temps de vieillissement sur le module de cisaillement (voie alkoxyde),d) Effet du temps de vieillissement sur la limite à la rupture en flexion (voie alkoxyde), [44].

I.4.2.d Lavage, échange de solvant et modification de surface

Une fois le gel vieilli, il faut le purifier pour éviter que des impuretés viennent entraver le processus de séchage et de modification de surface (*e.g.* la présence de H_2O non soluble dans le CO_2). L'étape de purification se fait simplement en laissant tremper le gel dans un solvant pur (alcool ou organique), ce qui permet aux impuretés de sortir du gel par diffusion. Ce solvant est changé de multiples fois sur plusieurs jours. Selon le volume du gel, sa géométrie ou la méthode de synthèse, ce processus de purification peut durer de quelques heures à quelques semaines.
Une fois les lavages et l'échange de solvant effectués, une étape d' « hydrophobisation » du matériau a lieu par modification de surface. Pour ce faire, on substitue les groupements silanols résiduels Si-OH polaires, par greffage de groupes non polaires tels que le triméthylchlorosilane (TMCS) ou l'hexamethyldisilazane (HDMZ).
Son intérêt est double :

1. Il permet à la structure de l'aérogel de ne pas se dégrader avec le temps lors de l'adsorption d'eau en présence de forte humidité ou d'eau liquide. Si de l'eau venait à remplir les pores de l'aérogel et à s'en évaporer, les forces de pression capillaire conduiraient à un effondrement partiel de la structure. Dans un but d'application dans l'isolation thermique, une reprise hydrique maximum est imposée par les normes françaises.
2. Grâce à la modification de surface, la répulsion des groupes non polaires alkyles et leur forte interaction en solvant organique permet de réduire fortement les contraintes capillaires sur le réseau de silice lors d'un séchage ambiant. Cela mène par la suite à l'effet ressort – ou « *spring-back* » qui rend réversible la densification en rouvrant les pores lors des dernières étapes de séchage grâce à la répulsion des groupes incondensables et à l'élasticité du squelette de silice.

La Figure I.4-7 illustre le greffage d'un groupe triméthylsilane sur un groupe silanol. Initialement, le groupe silanol résiduel OH peut créer des liaisons polaires avec l'eau. En ajoutant le HDMS, il réagit spontanément avec le groupement silanol pour former un groupe triméthylsilane hydrophobe.

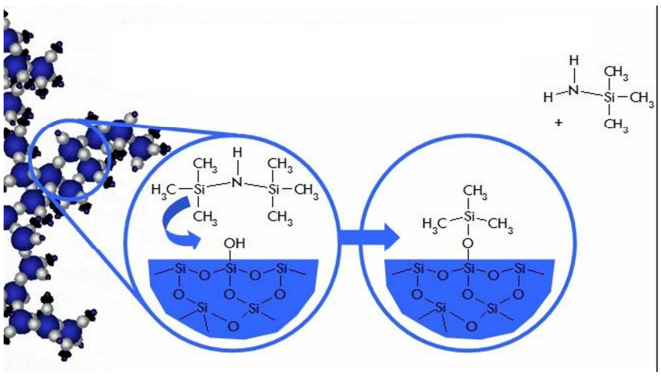


Figure I.4-7 : Réaction de silylation entre l'agent hydrophobant HDMS et un groupe silanol en surface du gel de silice

I.4.2.e Séchage du gel

i. Le problème des contraintes capillaires

La présence de liquide dans les pores conduit inévitablement à des pressions capillaires à l'interface liquide/vapeur lors de l'évaporation du solvant. La pression capillaire suit la loi de Laplace :

$$P_{cap} = \frac{2\gamma}{Rp}\cos(\theta) \tag{I.24}$$

avec :

P_{cap} la pression capillaire dans le pore

γ la tension de surface du liquide

Rp le rayon du pore

θ l'angle de mouillage de la phase liquide à la surface des pores

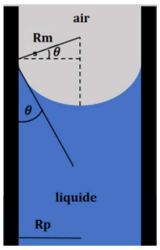


Figure I.4-8: Pression capillaire dans un pore à l'interface liquide/vapeur

Pour des gels de silice dont la taille des pores est très faible, de l'ordre du nanomètre, les pressions capillaires sont très importantes et conduisent à la destruction du squelette de silice en l'absence de traitement particulier.

ii. Les solutions de séchage

Pour éviter l'effondrement de la structure, trois méthodes de séchage sont envisageables :

1. Le séchage par cryodessiccation
2. Le séchage supercritique
3. Le séchage par évaporation

Les deux premiers cas contournent l'interface liquide/vapeur en passant respectivement par la phase solide (cryodessiccation) ou la phase supercritique (séchage supercritique). Le séchage par évaporation nécessite le passage par un changement de phase liquide vapeur. On parle également de séchage ambiant.

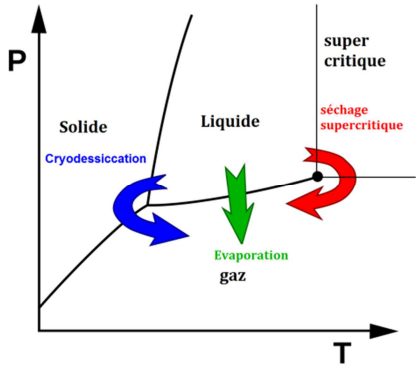


Figure I.4-9: Diagramme de phase d'un solvant quelconque

De manière générale, la cryodessiccation des gels de silice conduit à des matériaux fissurés, ou même réduits en poudre [48]. Le cas supercritique est de loin le plus utilisé car il permet d'éliminer totalement les contraintes capillaires lors du séchage. Il est alors possible de produire des aérogels monolithiques de grandes dimensions. Le séchage supercritique peut être effectué avec un solvant organique (éthanol, méthanol, acétone) et nécessite alors de monter le solvant à haute température et à haute pression (240 °C et 60 bars pour l'éthanol), ou alors avec du CO_2 liquide dont la température critique est seulement 31 °C et la pression critique 72 bars. Pour ce dernier, il est nécessaire de changer le solvant qui imprègne le gel par du CO_2 en phase liquide, ou de l'échanger directement par du CO_2 en phase supercritique pour un processus plus rapide.

Pour le séchage ambiant, il est absolument indispensable que le gel soit vieilli suffisamment, et que la modification de surface par silylation ait eu lieu. En ce sens, le squelette de silice est plus solide et les pressions capillaires sont diminuées dans les pores en raison d'un angle de mouillage plus important entre la phase liquide et la paroi du pore. De plus, les groupes alkyles en surface de pores se repoussent entre eux et contrecarrent les effets de pressions capillaires. On voit donc durant le séchage une première phase de rétrécissement du gel induite par les pressions capillaires suivie d'un effet « *spring back* » pendant lequel le matériau retrouve jusqu'à 85 % de son volume initial [49]. Cependant, à cause de la fragilité inhérente du squelette de silice, la forme monolithique n'est pas conservée, et le matériau résultant se présente sous forme de granules.

Le séchage au CO_2 supercritique s'est majoritairement imposé dans la production des aérogels car il est le seul capable de produire des aérogels monolithiques sans aucune densification du réseau de silice et à moindre danger. Néanmoins, il reste un procédé long, énergivore et coûteux qui freine considérablement la production à grande échelle.

La Figure I.4-10 résume toutes les étapes de synthèse d'un aérogel dans sa globalité. En pratique, certaines étapes sont faites en même temps pour accélérer la production.

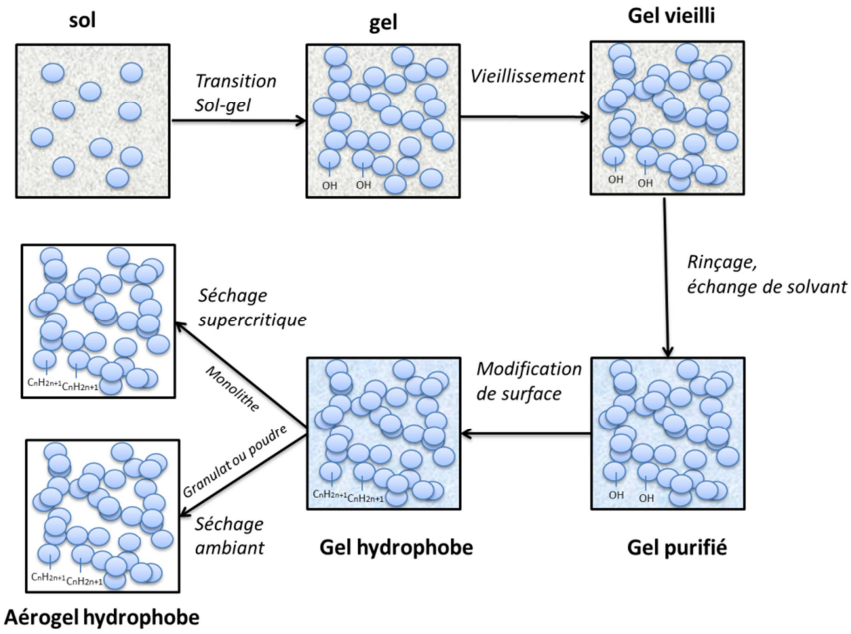


Figure I.4-10 : Illustration des étapes de synthèse d'un aérogel de silice

I.4.3 Propriétés et applications

Du fait de sa structure particulière, l'aérogel de silice comporte des propriétés physiques remarquables. Le Tableau I.4-1 résume les propriétés d'un aérogel de silice séché par voie supercritique.

Propriétés	**Valeurs typiques**
Masse volumique apparente	0,03 à 0,1 $g \cdot cm^{-3}$
Surface spécifique	600-1000 $m^2 \cdot g^{-1}$
Porosité	85-95 %
Diamètre de pores moyen	20 nm
Diamètre de particule primaire de silice	2-5 nm
Indice de réfraction	1,05
Vitesse du son	100 $m \cdot s^{-1}$
Conductivité thermique	0,015 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
Module de Young	1–10 MPa
Contrainte en compression (10 % déformation)	0,1 MPa
Résistance à la flexion	50 kPa

Tableau I.4-1 : Propriétés des aérogels de silice séchés par voie supercritique

L'aérogel de silice est un matériau extrêmement poreux, composé jusqu'à 95 % d'air. Il fait ainsi partie des matériaux les plus légers connus de nos jours avec une densité inférieure à 0,1 $g \cdot cm^{-3}$. Son réseau poreux ouvert, comporte en majorité des pores interconnectés de 2 à 100 nm et la surface spécifique associée peut atteindre jusqu'à 1000 $m^2 \cdot g^{-1}$. Cette texture

remarquable fait des aérogels d'excellents catalyseurs actifs ou supports de catalyseur [50]. Ils trouvent également des applications dans le piégeage de molécules ou nanoparticules. La NASA a utilisé les aérogels en tant que collecteur de poussière d'étoiles dans le cadre de la mission Stardust [51]. Dans le domaine biomédical, le contrôle de taille de pores et de surface spécifique fait des aérogels des candidats idéaux pour des systèmes de diffusion contrôlée de médicament intracorporel [52].

La forte tortuosité du réseau de silice combinée avec une taille de pores très faible fait de l'aérogel le meilleur isolant thermique solide à pression ambiante avec une conductivité thermique de 0,015 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Cette valeur est bien inférieure à la conductivité thermique de l'air dans les mêmes conditions (0,025 $Wm^{-1} \cdot K^{-1}$). Les aérogels ont déjà été utilisés en tant qu'isolant thermique dans le domaine aéronautique et spatial [53]. Ils ont été utilisés par exemple pour isoler le rover martien Sojourner lors de la mission Pathfinder Mars. Dans le domaine du bâtiment, l'aérogel de silice tel que présenté jusqu'à présent est bien trop fragile pour permettre son utilisation. Ses propriétés mécaniques sont très faibles en raison des faibles surfaces de contact entre chaque nanoparticule. Il est donc nécessaire de renforcer le comportement mécanique de l'aérogel pour être en accord avec les normes de construction. Cependant, il peut aussi être utilisé dans l'isolation des vitrages en raison de la possibilité de le synthétiser transparents.

Figure I.4-11: Monolithe d'aérogel de silice utilisé en tant que vitrage, Centre PERSEE , Mines ParisTech

Pour les mêmes raisons que précédemment, l'aérogel est un excellent isolant acoustique. La propagation d'une onde sonore en son sein est atténuée en vitesse et en amplitude. La vitesse de son qui la traverse est de l'ordre de 100 $m \cdot s^{-1}$, ce qui en fait un matériau à fort potentiel pour des applications acoustiques. Une application intéressante concerne l'amélioration des télémètres pour appareil photographique. Le milieu aérogel, en raison de sa faible densité et de

la faible vitesse de propagation du son en son sein, permet un meilleur ajustement d'impédance acoustique entre l'air et le transducteur ultrasonore [54].

I.4.3.a Le cas de l'isolation thermique du bâtiment : vers de nouveaux produits aérogels

Bien que les aérogels sous forme monolithique aient réussi à trouver des applications dans divers domaines, leur faiblesse mécanique empêche de prime abord une application dans l'isolation thermique du bâtiment, car ils imposent de sévères restrictions quant au transport, à la manipulation, à la mise en forme et à la durabilité du matériau. À titre d'exemple, la certification ACERMI impose des propriétés mécaniques minimales pour l'utilisation d'un isolant dans le bâtiment. Elle recommande pour un matériau sous forme de panneau, une flèche inférieure à 0,12 m pour une flexion sous son propre poids, une résistance à la traction perpendiculaire aux faces supérieure à 50 kPa, et un allongement à la rupture supérieur à 2 % [55]. Pour un matériau sous forme de lit granulaire « en vrac », les exigences mécaniques sont nettement plus souples, ainsi l'utilisation de granules d'aérogel de silice pour combler des cavités est envisageable. Comme vu dans le paragraphe «synthèse I.4.2 », il est possible d'obtenir des granules d'aérogel de silice en séchant un gel hydrophobé à pression ambiante. La conductivité thermique effective du lit granulaire est légèrement supérieure à celle d'un aérogel monolithique en raison des macropores entre chaque granule. Elle atteint environ 0,019 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ en conditions normales. Cabot reste aujourd'hui le leader dans la commercialisation de granules aérogels avec ses produits LUMIRA® et ENOVA®. En France, la société ENERSENS est l'une des premières à commercialiser des granules aérogels à travers toute l'Europe avec son produit Kwark®.

Figure I.4-12: Granules d'aérogel fabriqué par la société ENERSENS - produit Kwark ®

L'autre solution envisagée par les industriels pour la commercialisation d'aérogel de silice en tant qu'isolant thermique est la réalisation de matériau composite. Le but est d'améliorer les propriétés mécaniques de l'isolant en y ajoutant une phase permettant de supporter les efforts mécaniques à la place de la phase de silice. Pour cela, un mat fibreux, ou une mousse organique est imprégné par le sol afin de former un gel renforcé qui une fois sec donnera un matériau composite. La méthode utilisant un mat fibreux est la plus courante à ce jour et elle est utilisée par les grands acteurs de l'aérogel : Aspen et Cabot. Le matériau composite est appelé couramment « *blanket* » et possède une conductivité thermique à peine supérieure à celle du

monolithe (0,015–0,021 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$). L'utilisation d'un mat fibreux ou d'une mousse organique en tant que matrice permet également un séchage ambiant. En effet, la matrice maintient la cohésion globale de l'aérogel après séchage ambiant, et permet même d'avoir une certaine macro-flexibilité du produit final. Le principal défaut de ces « *blankets* » reste encore leur caractère poussiéreux lors de leur manipulation et de leur découpe. Cependant, la société Cabot annonce que leur produit ThermalWrap est totalement non poussiéreux du fait de la fusion des fibres polymères avec la phase aérogel de silice, formant ainsi une structure en « nid d'oiseau » qui empêche les particules de silice de se disperser dans l'air.

Figure I.4-13: Principe de fabrication d'un *blanket* aérogel (gauche), *blanket* aérogel Spaceloft® commercialisé par Aspen obtenue par séchage supercritique (droite)

La voie « *blanket* » reste aujourd'hui la seule capable d'améliorer les propriétés mécaniques de l'aérogel de silice sans trop dégrader la conductivité thermique, tout en permettant un séchage ambiant. D'autres recherches portent sur l'hybridation d'aérogel organique-inorganique par greffage de composants organiques dans la matrice de silice [56]–[58]. Cette méthode est appelée voie « Ormosil » (Organically modified silica) et permet d'obtenir un aérogel hybride très flexible. Cependant, le matériau résultant reste très macroporeux et sa conductivité thermique avoisine les 0,060 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ [59]. Une autre manière pour combiner les réseaux organiques et inorganiques dans le même matériau est la formation de réseaux interpénétrés. La Figure I.4-14b montre un exemple d'un tel aérogel comportant des réseaux interpénétrés silice-cellulose [60]. Là encore, la conductivité thermique est impactée : 0,030 – 0,050 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Une dernière approche pour l'hybridation de la phase organique et inorganique est le procédé de « *crosslinking* ». Il permet de greffer des molécules organiques sur un gel de silice formé au préalable, suivi de réactions de réticulation entre ces molécules. Le réseau organique réticulé peut croître autour du réseau minéral et vient donc augmenter la flexibilité du matériau hybride final. L'association d'un hybride Ormosil avec un procédé de *crosslinking* est également possible et permet même la greffe d'une plus grande variété de précurseurs organiques tels que les isocyanates, l'époxy, ou le styrène. Les recherches de Leventis et de Meador sont à l'origine de nombreux travaux dans ce domaine [42], [61], [62]. Leurs différents essais de « «*crosslinking* » ont pu donner des aérogels hybrides avec des conductivités thermiques entre

0,019 et 0,036 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$[63]. Plus récemment, il a été montré que le « *crosslinking* » sur des aérogels organiques à base de polyimide ou de polyurea permettait d'obtenir à la fois un matériau flexible, résistant et avec une conductivité thermique très proche de celle de l'aérogel de silice natif : 0,014 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ [64], [65]. Cependant, la synthèse de ce type d'aérogel est très coûteuse et ces matériaux semblent être destinés au domaine spatial plutôt qu'au domaine du bâtiment.

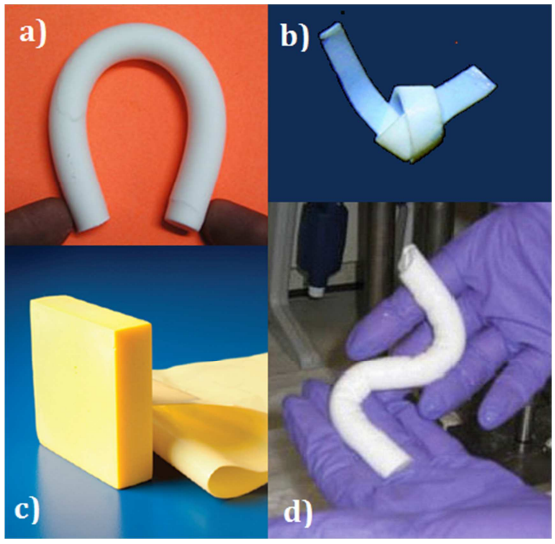


Figure I.4-14 : a) Aérogel Ormosil à base de MTMS,
b) Aérogel à base de réseau de silice et de cellulose interpénétrés,
c) Aérogel organique à base de polyimide « crosslinked » avec un composé triamine aromatique,
d) Aérogel Ormosil « crosslinked » avec un composé d'isocyanate

I.4.3.b Considérations environnementales et sanitaires

Au-delà des performances thermiques remarquables de l'aérogel, un certain nombre de critères environnementaux et sanitaires doivent être pris en compte pour concurrencer les isolants conventionnels. Un isolant écoresponsable se doit d'être non-toxique et peu polluant. Qu'en est-il de l'aérogel de silice et de ses dérivés ? Beaucoup de craintes sont liées aux nanomatériaux et leurs effets néfastes sur la santé. L'aérogel étant lui-même composé de nanoparticules de silice agglomérées entre elles, il est normal d'étudier les risques qui y sont liés. Du point de vue de la toxicité du matériau, la silice se présente sous forme amorphe et n'est donc pas dangereuse. Cependant, les traitements d'hydrophobisation de surface réalisés doivent être pris en compte et peuvent assécher les voies respiratoires. Le risque d'être directement exposé à des nanoparticules est également très faible. La poussière émise (notamment dans le cas du *blanket*) est principalement constituée de fragments entiers du réseau de silice de taille micrométrique.

Concernant les risques lors de la synthèse de l'aérogel, ceux-ci ont grandement été diminués avec l'utilisation courante du TEOS en tant que précurseur et du CO_2 liquide pour le séchage. Pour les aérogels purement organiques néanmoins, l'utilisation de précurseurs chimiques toxiques tels que le résorcinol, formaldéhyde, isocyanate doit être prise en compte. Les aérogels

organiques ont également l'inconvénient d'être facilement inflammables et de dégager des fumées toxiques en cas d'incendie. Leur comportement vis-à-vis des émissions de COV est aussi nettement moins bon que celui des aérogels de silice. De manière générale, la production d'aérogel est assez énergivore, mais grâce à l'intérêt croissant du produit, l'optimisation des procédés de fabrication combinés avec une démarche de recyclage (utilisation de fibres recyclées pour les *blankets*, recyclage de l'éthanol et du CO_2 lors de la synthèse), l'énergie grise de l'aérogel pourra fortement être limitée dans le futur.

I.4.3.c Futur de l'aérogel

L'aérogel de silice sous toutes ses formes de commercialisation permet une amélioration considérable des performances d'isolation thermique en comparaison avec les isolants conventionnels. Il est cependant considéré comme un produit de niche, du fait de son prix élevé. Son prix actuel est d'environ 4 000 €/m³, mais devrait atteindre les 1 500 €/m³ d'ici les dix prochaines années grâce aux économies d'échelle, à l'amélioration du procédé de fabrication, à l'intégration de la synthèse de précurseur sur site et à l'optimisation des réseaux de distribution. En 2016, le marché global de l'aérogel était estimé à 400/500 M$, avec 75 % pour l'aérogel de silice. Selon les scénarios de prévision des études de marché, il devrait atteindre 1 900 M$ à partir de 2020 avec un taux de croissance annuel moyen (CAGR) de 20 à 35 %. Avec la prise de conscience climatique, la part de marché de l'aérogel dans le secteur de l'isolation thermique du bâtiment devrait augmenter de 40 % en Amérique du Nord et en Europe.

En 2016, les *blankets* aérogels constituaient 70 % du revenu global, et leur taux de croissance annuel moyen devrait augmenter de 40 % jusqu'à 2020. Enfin, géographiquement, c'est l'Asie pacifique qui devrait voir la plus forte croissance sur la période 2016-2021 avec un taux de croissance annuel moyenne de 38 %.

Un enjeu majeur pour le développement de la filière est l'identification de sources de silice à bas coût et de précurseurs aisés à mettre en œuvre.

I.5 Les transferts de chaleur dans les aérogels de silice

I.5.1 Introduction

Les propriétés thermiques de l'aérogel de silice ont été largement étudiées en raison de l'intérêt porté à ce matériau extrêmement isolant. La conductivité thermique est le paramètre le plus important en considérant qu'elle est directement corrélée à l'efficacité énergétique des bâtiments. De nombreux modèles tentent de modéliser cette conductivité thermique afin de comprendre le transfert thermique dans l'aérogel, mais aussi pour orienter l'optimisation de leur fabrication pour les applications de super-isolation thermique.

Dans un matériau poreux comme l'aérogel, le transfert de chaleur est décrit par l'équation de la chaleur (I.25). Les différents modes de transfert de chaleur impliqués sont illustrés en Figure I.5-1. Le transfert de chaleur se décompose en trois modes : conduction solide à travers le squelette de silice, conduction gazeuse à travers les pores ouverts, et rayonnement par émission entre parois. À l'échelle macroscopique, le transfert de chaleur par conduction solide et gazeuse suit la loi de Fourier (I.26).

$$\boldsymbol{\nabla}.\boldsymbol{q} + \phi = \rho.c.\frac{\partial T}{\partial t} \tag{I.25}$$

$$\boldsymbol{q} = -\lambda \boldsymbol{\nabla}(T) \tag{I.26}$$

avec $\boldsymbol{q}$ la densité de flux thermique, ϕ un terme source, ρ la densité, c la chaleur spécifique, T la température locale, λ la conductivité thermique.

L'équation (I.25) décrit la conservation d'énergie et l'équilibre des flux thermiques dans un volume fini et l'équation (I.26) stipule que la densité de flux thermique est proportionnelle au gradient de température. Le terme $\rho.c$ est appelé capacité thermique volumique et n'intervient que dans le cas de transferts de chaleur non stationnaires. Le terme source ϕ peut décrire les gains ou pertes par rayonnement thermique dans le cas de matériaux aérogels optiquement fins. Dans ce cas, le terme source décrivant le rayonnement thermique est donné par :

$$\phi = \boldsymbol{\nabla}.\boldsymbol{q_r} \tag{I.27}$$

où $\boldsymbol{q_r}$ est la densité de flux radiatif qui est la solution de l'équation de transfert radiatif [66].

Dans le cas d'aérogels optiquement épais, le transfert par rayonnement est décrit par un mécanisme de diffusion de photons et suit la loi de Fourier. Le transfert de chaleur ne dépend alors que du gradient local de température. La conductivité thermique est ainsi une propriété intrinsèque du matériau et ne dépend pas des conditions aux limites. On l'appelle alors conductivité thermique effective.

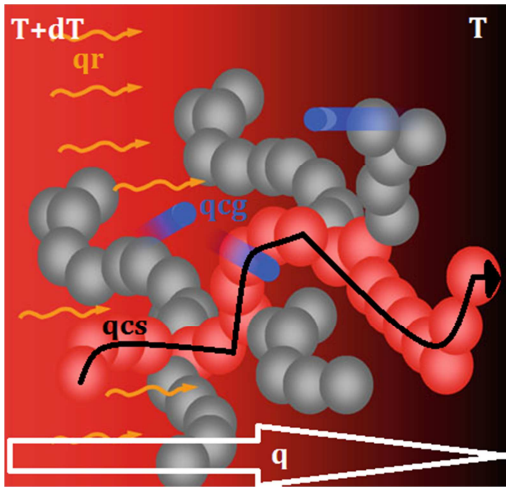


Figure I.5-1: Mécanismes de transfert de chaleur dans un aérogel de silice, qr représente le flux radiatif, qcg le flux par conduction gazeuse, qcs le flux par conduction solide. q est le flux thermique total égal à la somme des trois précédents dans le cas d'un aérogel optiquement épais.

On remarquera que la convection naturelle n'intervient pas dans le transfert de chaleur en raison de la petite taille des pores. Le nombre de Rayleigh permet de déterminer si le transfert de chaleur est dominé par la conduction gazeuse ou la convection. Dans un pore, il se définit suivant l'équation ci-dessous :

$$Ra = \frac{g\beta}{\nu\alpha}.\Delta T.d^3 \tag{I.28}$$

avec g l'accélération de la pesanteur, β le coefficient de dilatation thermique volumique (1/T dans le cas d'un gaz), ν la viscosité cinématique du gaz, α la diffusivité thermique du gaz, ΔT le gradient de température de part et d'autre du pore et d le diamètre du pore. Pour un pore de diamètre 100 nm et un écart de température de 1000 $K \cdot m^{-1}$, le nombre de Rayleigh vaut environ 10^{-17}, ce qui est bien en dessous de la valeur limite 2000 à partir de laquelle la convection est prise en compte.

I.5.2 Effets à prendre en compte dans le transfert de chaleur

D'après la théorie du transfert thermique à l'échelle nanométrique [67], de nombreux facteurs influencent le transfert de chaleur dans un matériau mésoporeux. L'effet de taille des nanoparticules par exemple réduit le transfert de chaleur par conduction solide alors que l'effet de raréfaction est à la base du faible transfert de chaleur par conduction gazeuse. Le présent chapitre a pour objectif de lister les effets qui interviennent dans le transfert de chaleur et d'en expliquer les causes et les conséquences.

I.5.2.a Effet de taille

L'effet de taille intervient lorsque les longueurs caractéristiques des structures sont plus faibles que le libre parcours moyen des vecteurs énergétiques. Dans le cas de l'aérogel de silice, la petite taille des particules primaires de silice est comparable au libre parcours moyen des phonons (vecteur énergétique dans un solide). Ainsi, l'effet de taille peut être attribué à la diffusion des phonons par les bords du squelette de silice ou des impuretés, réduisant ainsi le transfert par conduction solide et permettant une conduction solide inférieure à celle du matériau constituant le squelette (silice dans ce cas précis). Un effet de taille est également présent dans le transfert thermique via la phase gazeuse. Dans ce cas, le libre parcours moyen des molécules d'air est inférieur aux dimensions caractéristiques du réseau poreux. Ainsi, il est plus probable qu'une molécule de gaz heurte une paroi de pores plutôt qu'une autre molécule, réduisant ainsi le transfert de chaleur de la phase gazeuse. On dit alors qu'on est dans un régime de raréfaction, il est possible d'avoir ainsi une conduction gazeuse inférieure à celle de l'air en espace non confiné.

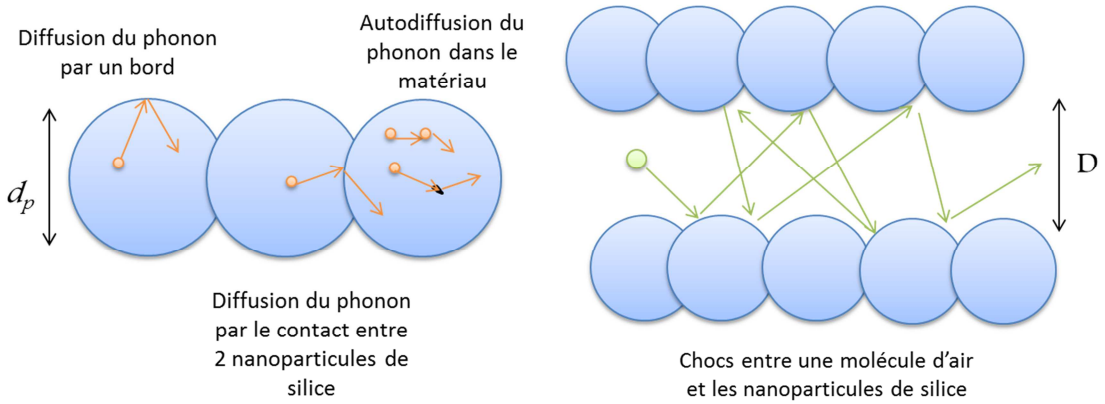


Figure I.5-2: Influence de l'effet de taille sur le transfert de chaleur dans le squelette solide de silice (gauche), dans le réseau poreux (droite). d_p : diamètre des particules, D : diamètre de pore.

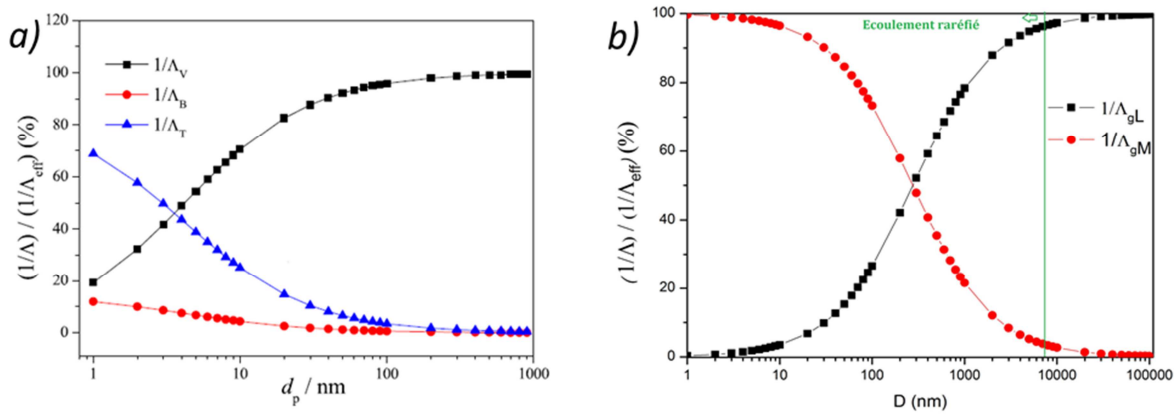


Figure I.5-3: a) Contribution des résistances thermiques dans le squelette de silice pour une surface de contact entre nanoparticules égale 0,5 d'après le modèle de Chen [68]. Λ_V représente la contribution à la résistance propre du matériau (phénomènes d'autodiffusion des phonons), Λ_B la contribution à la résistance par effets de bord et Λ_T la contribution à la résistance par contact entre nanoparticules.

b) Contribution des résistances thermiques dans le réseau poreux d'après le modèle de Kaganer [69]. Λ_{gL} correspond à la résistance due à l'autodiffusion des molécules d'air (chocs entre molécules) et Λ_{gM} la résistance due aux effets de bords (chocs contre les parois).

I.5.2.b Effets de couplage

i Couplage conduction gazeuse - conduction solide

Des effets de couplage entre conduction solide et conduction gazeuse ont été observés dans les matériaux semi-transparents tels les aérogels de silice ou les matériaux avec de nombreux points de contact (grains, fibres) [69]. Ce mécanisme de couplage peut être attribué aux collisions entre les molécules d'air et les particules solides de silice. Aux abords des particules primaires de silice voisines, la diffusion gazeuse des molécules génère des ponts thermiques. La Figure I.5-4 illustre le cas d'un transfert thermique par conduction solide et gazeuse dans un aérogel de silice entre deux isothermes, sans prendre en compte le phénomène de couplage. Les modes de transfert sont indépendants les uns des autres et n'interagissent pas entre eux. La conduction solide a lieu par la partie du squelette connectée aux deux isothermes. La partie non connectée est appelée masse morte et ne participe pas aux transferts thermiques par conduction solide.

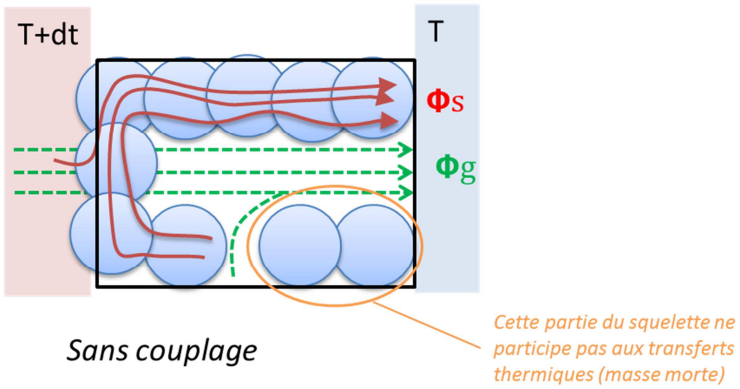


Figure I.5-4 : Transfert thermique par conduction solide et gazeuse dans un aérogel de silice entre deux isothermes T+dt et T en négligeant le couplage. Le flux thermique par conduction solide **Φ**s passe à travers le squelette de silice connecté (rouge). Le flux thermique par conduction gazeuse **Φg** passe par la porosité ouverte (vert). Si l'on néglige le couplage, il n'y a pas d'interaction entre **Φ**s et **Φ**g.

Néanmoins, si localement la résistance thermique entre n'importe quel couple de points du squelette solide est plus faible en passant par la phase gazeuse que par le squelette tortueux, il se forme un pont thermique par la phase gazeuse. Cette situation est illustrée en Figure I.5-5, si l'espacement entre les deux nanoparticules non connectées est assez faible, alors la résistance thermique entre A et B peut être plus faible que celle entre A et C. Le flux thermique favorise alors le chemin le moins résistif (chemin AB). C'est ce phénomène que l'on appelle couplage solide-gaz.

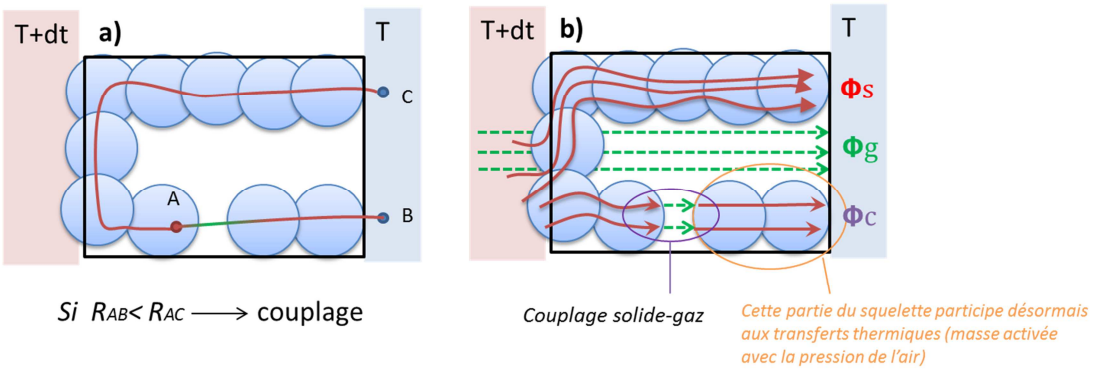


Figure I.5-5 : Illustration du phénomène de couplage entre deux nanoparticules non connectées. Si $R_{AB}<R_{AC}$ alors le flux thermique passe par le chemin AB à travers la phase gazeuse et « active » la masse non connectée. Le flux thermique transmis par cette zone de couplage est appelé Φ_c

La masse morte en Figure I.5-4 participe désormais aux transferts de chaleur, on dit qu'elle a été activée par la diffusion de l'air à son voisinage. On peut voir sur la Figure I.5-6, l'illustration de ce phénomène : en l'absence d'air, seule la masse connectée (en rouge) transmet la chaleur, mais en présence d'air, certaines parties du réseau solide sont activées (vert), favorisant alors le transfert thermique global. Ce phénomène s'accentue avec l'augmentation de la pression de l'air.

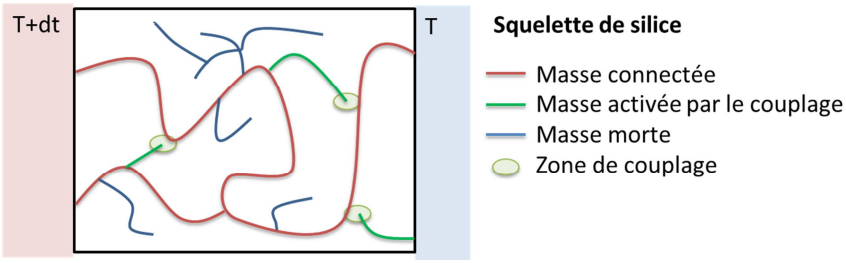


Figure I.5-6: Illustration du phénomène de couplage sur des parties entières du réseau de silice

Le couplage solide-gaz est également présent aux abords de deux nanoparticules en contact (voir Figure I.5-7). L'effet du couplage se manifeste donc en activant certaines masses mortes du squelette de silice (chainons entiers de nanoparticules), mais également tout le long du squelette solide entre chaque nanoparticule. A priori, le couplage dépend de la connectivité du réseau, de la taille des nanoparticules, du diamètre de pores et de la pression.

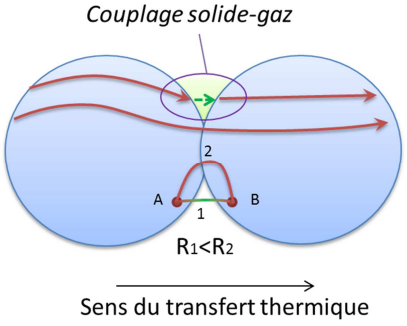


Figure I.5-7: Effet de couplage entre deux nanoparticules de silice en contact

ii Couplage conduction - rayonnement

Des effets de couplage conduction–rayonnement sont également mentionnés dans certaines études [70]. Le rayonnement thermique peut échauffer localement le squelette solide et en modifier la conductivité thermique locale. Cet effet de couplage intervient surtout lorsque des températures élevées sont en jeux, il peut être négligé sinon.

I.5.2.c Influence de l'épaisseur optique du matériau

La nature du transfert radiatif dans un aérogel (diffusive ou non-diffusive) dépend de l'épaisseur optique du matériau (I.29).

$$\tau(\Lambda) = \frac{d}{l_{pht}} = E*(\Lambda).d = e*(\Lambda).\rho.d \tag{I.29}$$

avec $\tau(\Lambda)$ l'épaisseur optique du matériau qui dépend de la longueur d'onde Λ, d l'épaisseur de l'aérogel considéré, l_{pht} le libre parcours moyen des photons de longueur d'onde Λ sur la distance d, $E*(\Lambda)$ le coefficient d'extinction effectif du matériau, $e*(\Lambda)$ l'extinction effective spécifique du matériau et ρ la masse volumique apparente de l'aérogel. Les coefficients d'extinction sont dits « effectifs » car ils tiennent compte de la diffusion anisotropique des rayonnements en plus de leur absorption. En pratique, l'atténuation du rayonnement des aérogels de silice se fait par pure absorption car la taille des nanoparticules de silice est largement inférieure aux longueurs d'onde en jeux.

Un matériau est dit optiquement épais lorsque $\tau(\Lambda) >> 1$; et optiquement fin lorsque $\tau(\Lambda) << 1$. L'aérogel de silice natif est optiquement fin pour des longueurs d'onde inférieures à 8 µm. On dit qu'il possède une fenêtre radiative sur cette gamme de longueurs d'onde, et qu'il se comporte comme un matériau semi-transparent. Dans ce cas, il est impossible de définir une conductivité radiative d'après la loi de Fourier car le transfert thermique dépend également des dimensions de l'aérogel, de ses propriétés optiques infrarouges et des conditions aux limites. N'importe quelle méthode expérimentale ayant pour but de déterminer la conductivité thermique de l'aérogel influencera elle-même les résultats, et la conductance mesurée ne sera pas celle du matériau, mais celle du système. La Figure I.5-8 illustre la mesure de conductance d'un échantillon d'aérogel semi-transparent par méthode de la plaque chaude. La mesure est effectuée pour des émissivités différentes des plaques (0,04 et 0,74). Les plaques avec une faible émissivité mesurent une conductance 10 % plus faible à température ambiante et 65 % plus faible à 600 K pour un aérogel de densité 50 $kg \cdot m^{-3}$. Cette différence diminue avec l'augmentation de l'épaisseur optique du matériau.

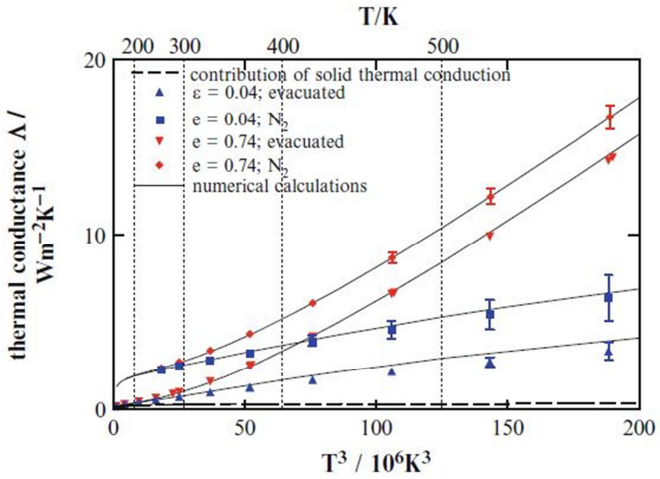


Figure I.5-8: Conductance thermique mesurée pour un aérogel de silice (50 kg · m^{-3} ; 6,7 mm) en fonction de la température au cube. Le test a été fait sous deux atmosphères différentes et deux conditions limites différentes (émissivité des plaques de 0,04 et 0,74),[70].

La description du transfert radiatif dans un aérogel optiquement fin fait intervenir des équations integro-différentielles couplées qui ne peuvent pas être résolues analytiquement. Zeng et al. et Heineman et al. [70], [71] ont résolu numériquement le transfert de chaleur couplé pour un aérogel de silice, les résultats de simulation sont présents sur la Figure I.5-8.

Pour diminuer le transfert radiatif de l'aérogel de silice, une solution utilisée est le dopage de la matrice de silice à l'aide d'opacifiants infrarouges afin d'augmenter l'extinction des rayonnements infrarouges. Les opacifiants utilisés sont généralement des particules de carbone (absorbantes), ou de dioxyde de titane (diffusantes) en faible concentration pour limiter l'augmentation de la conduction solide. L'aérogel opacifié devient ainsi un matériau optiquement épais, au même titre que les aérogels organiques ou de carbone. La Figure I.5-9 montre les propriétés d'extinction des aérogels semi-transparents et opaques et la fonction pondérée de Rosseland qui décrit le transfert thermique radiatif à 300 K. L'aérogel de silice non opacifié est quasi-transparent en dessous des longueurs d'onde 8 µm et n'absorbe plus le rayonnement thermique. Cette plage correspond à environ 25 % du transfert énergétique radiatif à 300 K. Pour les aérogels opacifiés, cette fenêtre radiative n'existe plus, et le transfert radiatif peut être considéré comme un phénomène local caractérisé par un transfert diffusif.

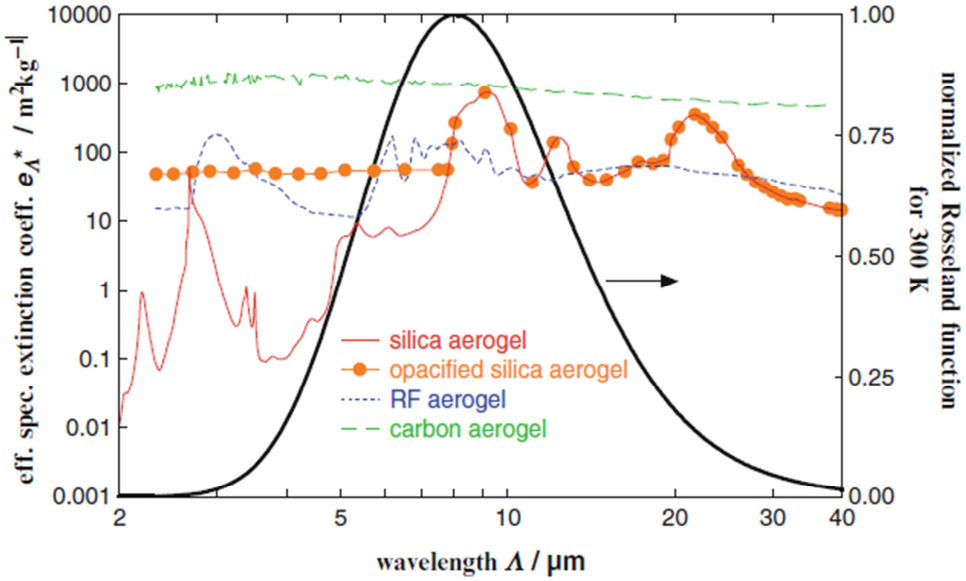


Figure I.5-9: Extinction effective spécifique d'aérogel de silice optiquement fin (silice pure) et optiquement épais (silice opacifiée, carbone, RF). La fonction de Rosseland normalisée à 300 K est également montrée [72].

L'opacification des aérogels est d'autant plus intéressante pour des applications à haute température puisque la fonction de Rosseland glisse vers les courtes longueurs d'onde, où le transfert énergétique radiatif devient beaucoup plus important. Les travaux sur l'optimisation du dopage pour opacification peuvent être trouvés dans les références [71], [73], [74].

I.5.2.d Effet de l'adsorption d'eau

Lorsque l'aérogel de silice est placé dans un environnement humide, son squelette adsorbe la vapeur d'eau présente dans l'air pour former un film liquide à sa surface. Une fraction de cette vapeur d'eau reste à l'état gazeux et vient augmenter légèrement la pression totale dans le réseau poreux, augmentant la conduction gazeuse.

Étant donné que la conductivité du film d'eau liquide est nettement supérieure à celle de l'aérogel, les propriétés d'isolation thermique du matériau sont dégradées. L'influence de l'humidité sur la conductivité thermique effective des matériaux à base de silice nanostructurée a été étudiée par différentes équipes [75], [76]. Les études ont montré une corrélation linéaire entre la conductivité thermique effective et la masse d'eau adsorbée par le matériau poreux. Il est d'usage de définir un coefficient de proportionnalité K entre la conductivité thermique « humide » λ_H et la conductivité « sèche » λ_{sec}.

$$\lambda_H = \lambda_{sec} + K.u \tag{I.30}$$

u désigne la teneur en eau massique du matériau qui représente la masse d'eau adsorbée en %.

Heinemann et Schwab et al. [75], [76] ont estimé ce coefficient à 0,3 -0,5 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ pour un cœur de silice pyrogénée dans un PIV, pour une température de 10 °C. Le facteur de proportionnalité dépend aussi de la température, il atteint 1,18 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ à 50 °C.

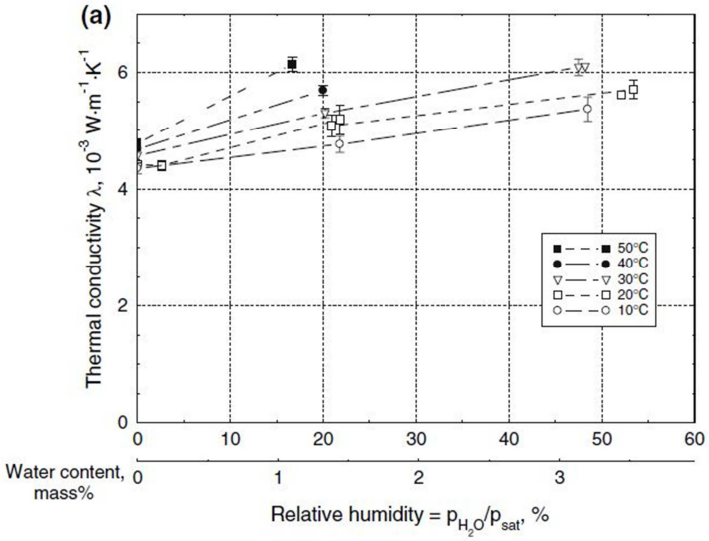


Figure I.5-10: Conductivité thermique mesurée pour différentes humidités relatives et différentes températures pour un cœur de PIV en silice pyrogénée [75].

On observe sur la Figure I.5-10 la dépendance linéaire entre conductivité thermique et teneur en eau massique, mais également entre conductivité thermique et humidité relative. Ce dernier résultat est vrai seulement pour des humidités relatives inférieures à 50 %. L'humidité relative et la teneur en eau massique d'un matériau sont reliées par une courbe de sorption qui peut être décrite selon la formule suivante pour des matériaux mésoporeux [25]:

$$u = \frac{a\varphi}{b + \varphi} e^{c\varphi^d} \tag{I.31}$$

avec a, b, c, d des coefficients qui dépendent du matériau et φ l'humidité relative. À faible humidité relative, la relation précédente peut être linéarisée.

I.5.3 Modèle de conductivité thermique d'un aérogel de silice optiquement épais

Dans le cas d'un aérogel optiquement épais dans lequel le transfert de chaleur dépend seulement du gradient local de température, la conductivité thermique effective est la somme de la conductivité solide (contribution du squelette solide), de la conductivité gazeuse (contribution du réseau poreux) et de la conductivité radiative (I.32). Ce modèle découplé est le plus utilisé dans la littérature mais la plupart des prédictions faites à partir de ce modèle ont des valeurs plus faibles que celles obtenues par les récentes mesures expérimentales. Il s'avère que l'effet de couplage solide-gaz , intervient de manière significative dans le transfert thermique et agit comme un quatrième mode de transfert dans l'aérogel. L'équation (I.33), remplace alors l'équation (I.32).

$$\lambda_{eff} = \lambda_s + \lambda_g + \lambda_r \tag{I.32}$$

$$\lambda_{eff} = \lambda_s + \lambda_g + \lambda_r + \lambda_{coupl} \tag{I.33}$$

D'autres modèles de conductivité thermique effective ont été proposés, basés sur la conservation de l'énergie dans un volume élémentaire représentatif de la structure de l'aérogel [77], [78] ou bien sur les propriétés fractales de l'aérogel [79].

I.5.3.a Modèles de conductivité solide

i Modèles théoriques

La conductivité solide est la contribution du réseau solide de l'aérogel à la conductivité thermique effective. Elle dépend de la structure du squelette, de l'inter-connectivité des particules primaires et de leur composition chimique. Pour un matériau poreux, la conductivité thermique solide peut être déduite par analogie avec la propagation d'ondes sonores dans le matériau selon l'équation (I.34) [80].

$$\frac{\lambda_{cs}}{\lambda_0} = \frac{\rho v}{\rho_0 v_0} \tag{I.34}$$

avec λ_{cs} la conductivité solide de l'aérogel, λ_0 la conductivité du squelette, ρ la densité de l'aérogel, ρ_0 la densité du squelette, v la vitesse de propagation d'une onde sonore dans l'aérogel, v_0 la vitesse de propagation d'une onde sonore dans le squelette.

Les vitesses de propagation des ondes sonores et les densités peuvent être directement obtenues par des essais expérimentaux. Pour des aérogels avec une densité comprise entre 20 $kg \cdot m^{-3}$ et 100 $kg \cdot m^{-3}$, la vitesse de propagation du son vaut $v = 4080\rho\sqrt{\lambda_{cs}/(\rho_0 v_0)}$ [81]. Pour des aérogels de masse volumique supérieure à 100 $kg \cdot m^{-3}$, $v = 0{,}39(\rho/\rho_0)v_0^{0.88}$. Pour la silice massive, elle est de l'ordre de 5 000 à 6 000 $m \cdot s^{-1}$.

Pour le calcul de la conductivité du squelette, plusieurs approches existent :

- On considère la conductivité du squelette égale à celle du matériau massif. Ce modèle est assez réducteur, car il considère que les chaleurs spécifiques du matériau poreux et du matériau massif sont égales et que le libre parcours moyen des phonons est petit devant la taille des nanoparticules. L'effet de taille est ici négligé, or, il a été vu que pour des nanoparticules de diamètre inférieur à 30 nm, les effets de diffusions par les bords et par contact entre particules jouaient un rôle (Figure I.5-3). Ce modèle surestime donc la conductivité solide.
- On considère que la conductivité thermique du squelette est égale à celle des nanoparticules de silice calculée à partir du modèle de Chen [67] selon l'équation ci-dessous :

$$\lambda_0 = \lambda_p = \lambda_b \cdot \frac{3d_p}{3d_p + 8\Lambda_p} \tag{I.35}$$

avec λ_p la conductivité thermique des particules constituant le squelette, λ_b la conductivité thermique du matériau massif (silice), d_p le diamètre des particules et Λ_p le libre parcours moyen des phonons dans les particules de silice.

Bien que ce modèle tienne compte des effets de taille des nanoparticules, les effets dus aux résistances de contact entre les nanoparticules ne sont pas considérés.

- La conductivité thermique du squelette est calculée à partir de la théorie cinétique du modèle de Debye [82] (diffusion des phonons) selon l'équation (I.36).

$$\lambda_0 = \frac{1}{3}\rho_0 c v_0 \Lambda_0 \tag{I.36}$$

avec ρ_0 la densité du squelette, c la chaleur spécifique, v_0 la vitesse de propagation d'une onde sonore dans le squelette, Λ_0 le libre parcours moyen des phonons dans le squelette, il prend en compte les trois types de diffusions vus en Figure I.5-2 (autodiffusion, effets de bord et contacts inter-particules). Le calcul de Λ_0 se fait à partir des considérations géométriques des nanoparticules et peut être trouvé dans [83].

ii Modèles empiriques

À partir de mesures de conductivité thermique en conditions cryogéniques, et sous vide, il est possible de déterminer la conductivité thermique solide d'un aérogel. En conditions cryogéniques le transfert par rayonnement est négligeable, et sous vide, la conduction gazeuse disparaît totalement. Scheuerpflug et al.[84] et Kamiuto [85] ont observé une proportionnalité entre la conductivité solide et la conductivité de la silice .

$$\lambda_{cs}(T) = r.\lambda_b(T) \tag{I.37}$$

avec λ_{cs}la conductivité thermique solide, r le facteur de proportionnalité, λ_b la conductivité thermique de la silice.

Scheuerpflug et al. déterminèrent r expérimentalement pour des aérogels de densité comprise entre 70 et 260 kg · m^{-3}.

$$r = 3.10^{-5}\rho + 6.10^{-4} \tag{I.38}$$

Kamiuto affina la dépendance en densité avec son modèle :

$$r = \frac{\rho}{\rho_0} e^{-\left(9.298-6.91.\left(1-\frac{\rho}{\rho_0}\right)\right)\left(1-\frac{\rho}{\rho_0}\right)} \tag{I.39}$$

I.5.3.b Modèles de conductivité gazeuse

Le transfert de chaleur dans les écoulements raréfiés en milieu poreux est caractérisé par le nombre de Knudsen Kn, qui est le ratio entre le libre parcours moyen des molécules de gaz Λ_g et le diamètre du pore D.

$$Kn = \frac{\Lambda_g}{D} \tag{I.40}$$

Le libre parcours moyen des molécules d'un gaz non confiné est donné par :

$$\Lambda_g = \frac{k_B T}{\sqrt{2}\,\pi d_g^2 P} \tag{I.41}$$

avec k_B la constante de Boltzmann, T la température, d_g le diamètre apparent des particules de gaz et P la pression du gaz.

En condition atmosphérique standard (300 K, 1 bar), le libre parcours moyen des molécules d'air est de 70 nm.

La valeur du nombre de Knudsen correspond à différents régimes d'écoulement de l'air en milieu poreux.

- Kn > 10 : l'écoulement est moléculaire, les molécules d'air interagissent principalement avec les parois des pores et il n'y a que très peu de contacts entre les molécules. La conductivité thermique gazeuse est proportionnelle au nombre de molécules d'air, donc à la pression.
- 0,1 < Kn <10 : L'écoulement est transitoire, les molécules d'air percutent à la fois les parois (couche de Knudsen) et les autres molécules.
- 0,01 < Kn < 0,1 : L'écoulement est glissant, il a un comportement diffusif mais une fine couche de Knudsen raréfie l'air près des bords.
- Kn < 0,01 : L'écoulement est continu, la couche de Knudsen est négligeable devant le transfert diffusif. La conductivité thermique de l'écoulement est égale à celle de l'air libre : 0,026 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ à température et pression ambiante.

Kaganer [69] proposa une formulation unique de la conductivité gazeuse dans un milieu confiné valable pour les 4 régimes d'écoulement.

$$\lambda_g(P,T) = \frac{\Pi.\lambda_{g,0}(P,T)}{1 + 2.\beta(T).Kn(P,T)} \tag{I.42}$$

avec $\lambda_g(P,T)$ la conductivité thermique gazeuse, Π la porosité du matériau, $\lambda_{g,0}(P,T)$ la conductivité thermique du gaz dans un espace non confiné, $\beta(T)$ un coefficient qui dépend du gaz, de la nature de la surface solide et de la température. Le coefficient $\beta(T)$ est fonction du coefficient adiabatique du gaz et du coefficient d'accommodation à l'interface gaz/solide. Pour l'air, il vaut entre 1,5 et 3 selon les sources [70], [76], [86].

Le modèle de Kaganer est très utilisé pour prédire la conductivité gazeuse dans de nombreux domaines scientifiques en raison de sa simplicité. Cependant, Zeng et al. [78] ont remarqué que le libre parcours moyen des molécules d'air utilisé dans la formule était calculé pour un gaz non confiné et non pour le matériau poreux, menant à des résultats erronés pour D < 10 µm [87]. Ils ont ainsi proposé un nouveau modèle analytique basé sur la cinétique des gaz dans les

matériaux poreux. L'expression de la conduction gazeuse fait intervenir les propriétés texturales suivantes : densité, surface spécifique et porosité.

$$\lambda_g(P,T) = \frac{C_V(2{,}25\gamma - 1{,}25)0{,}461\left(P/k_BT\right)\left(\frac{8k_BT}{m_g\pi}\right)^{0.5}}{N_A(0{,}25.S.\frac{\rho}{\Pi}+\frac{1}{\Lambda_g})} \quad \text{(I.43)}$$

avec C_V la capacité thermique volumique du gaz, N_A la constante d'Avogadro, γ le coefficient adiabatique du gaz, k_B la constante de Boltzmann, P la pression du gaz, T la température, m_g la masse d'une particule de gaz, S la surface spécifique du matériau poreux en $m^2 \cdot kg^{-1}$, ρ la densité apparente, Π la porosité, Λ_g le libre parcours moyen des molécules de gaz dans un espace non confiné.

Le modèle de Zeng est en accord avec les résultats expérimentaux pour des aérogels de silice ayant une densité de 50-300 $kg \cdot m^{-3}$ et une taille de pores de 10-100 nm [88]. Néanmoins, les expériences de Swimm et al. [89], [90] et de Hemberger et al.[91] ont montré que les modèles de Zeng et de Knudsen sous-estiment grandement la conduction gazeuse pour des aérogels RF de tailles de pores moyennes 0,7 – 6 µm. Ainsi pour des pores entre 100 nm et 10 µm, les deux modèles de conduction gazeuse sous-estiment le transfert thermique (Figure I.5-11).

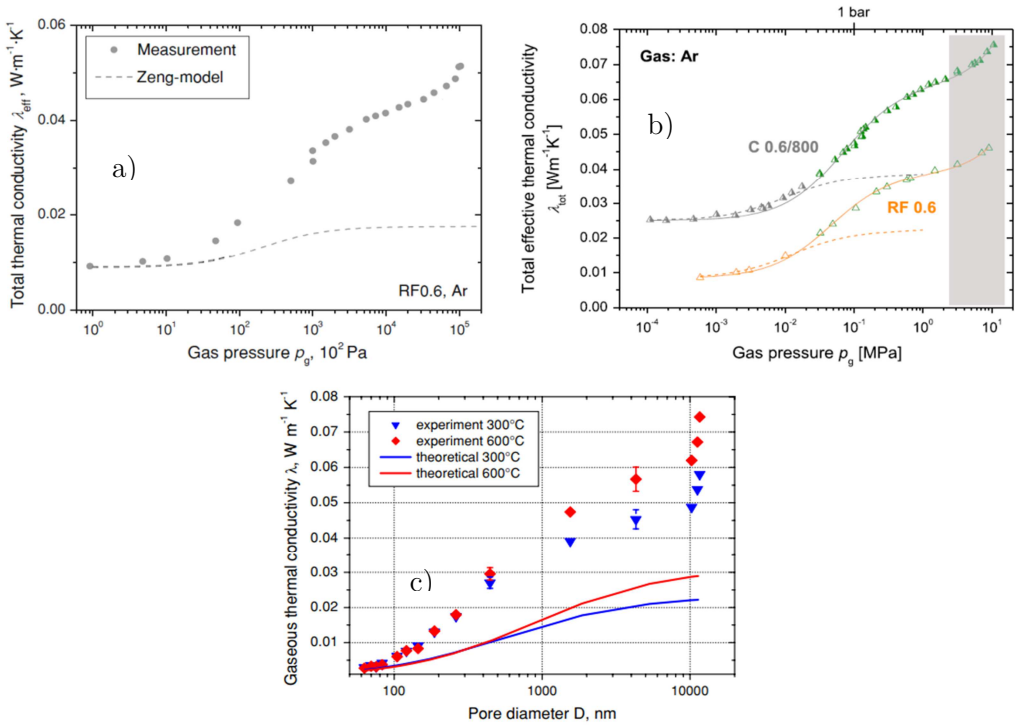


Figure I.5-11: (**a**) Conductivité thermique totale d'un aérogel RF en fonction de la pression, dans l'argon [89]. (**b**) Conductivité thermique d'un aérogel de carbone et d'un aérogel de résorcinol-formaldéhyde dans l'argon en fonction de la pression [90] (**c**) Contribution du transfert thermique gazeux d'un aérogel de carbone en fonction de la taille de pores dans l'argon. [91]. Les points sont issus de mesures expérimentales en laser flash et les traits pleins et pointillés correspondent à la prédiction faite à partir du modèle de Zeng (a) ou Knuden (b) et (c).

La formule de Knudsen est basée sur des parois planes et parallèles, et le modèle de Zeng considère une structure sphérique parfaite pour les pores. Les deux modèles négligent la réelle complexité de la structure de l'aérogel qui est à l'origine des effets de couplages solide/gaz du transfert thermique. En effet, les effets de couplage apparaissent aux abords des particules solides lorsque celles-ci sont suffisamment proches (Figure I.5-12).

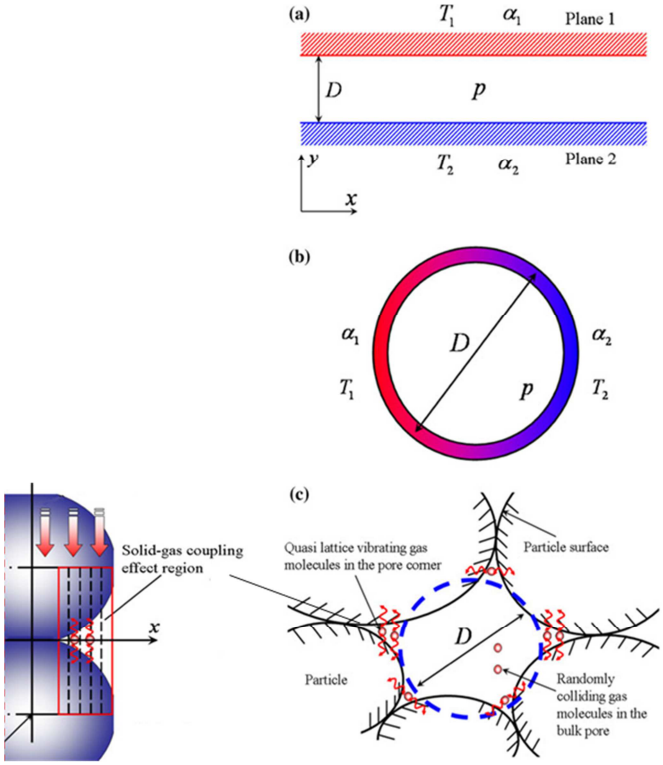


Figure I.5-12:Transport gazeux dans un pore a) Modèle de Kaganer, b) Modèle de Zeng, c) Structure réelle et effet de couplage

Swimm et al. [87] et Zhao et al. [92] ont proposé des modèles couplés de conductivité thermique solide/gaz en considérant la géométrie complexe du réseau solide de l'aérogel. Le modèle géométrique est basé sur un cylindre unitaire aux abords des nanoparticules de silice. Ce cylindre est divisé en N tranches concentriques d'épaisseur égale.

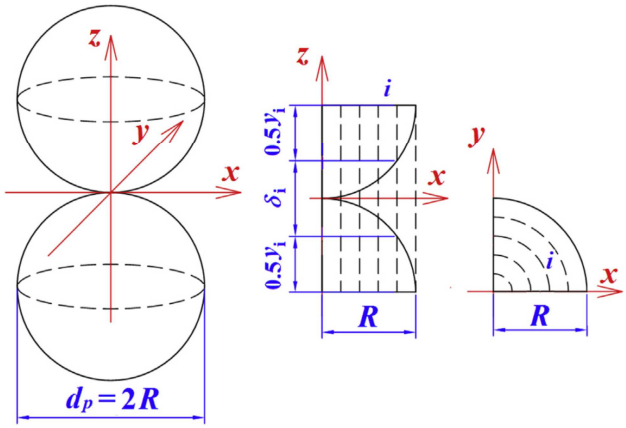


Figure I.5-13: Cylindre unitaire dans le modèle de Swimm et al. pour le calcul du couplage solide-gaz.

Le transfert thermique dans la i ème tranche est calculé selon un arrangement série (conduction solide/gazeuse), et le transfert thermique total dans le cylindre est calculé selon un arrangement parallèle entre chaque couche.
Swimm et al. proposent ainsi l'équation suivante pour l'estimation du terme de couplage :

$$\lambda_{coupl} = \frac{\frac{3}{2}(1-\Pi)2R}{\pi R^2} \sum_{i=1}^{N} \left(\frac{\delta_i}{\lambda_{g,i} A_i} + \frac{y_i}{\lambda_p A_i} \right)^{-1} \tag{I.44}$$

avec Π la porosité de l'aérogel, R le rayon de la particule, i est la i ème tranche de cylindre, δ_i la hauteur de la phase gazeuse dans la i ème tranche, y_i est la hauteur de la phase solide dans la i ème tranche, A_i est la surface de la couronne de la i ème tranche, $\lambda_{g,i}$ est la conductivité thermique gazeuse de la i ème tranche calculée selon le modèle de Kaganer , λ_p est la conductivité thermique de la nanoparticule du squelette solide calculée selon le modèle de Chen.

Les travaux de Zhao et al. ont repris ce modèle en intégrant une surface de contact non ponctuelle entre les nanoparticules de silice. De plus, contrairement au modèle de Swimm qui considère les particules solides comme pleines, Zhao et al. modélisent les particules comme microporeuses faites de particules de silice primaires interconnectées. Le calcul du terme de couplage est fait selon l'équation (I.44), adapté à la nouvelle géométrie de Zhao et al.
Les modèles de couplage précédents font intervenir de nombreux paramètres géométriques et nécessitent une intégration numérique pour déduire le terme de couplage final. L'utilisation de ces modèles est compliquée et peu pratique dans le domaine de l'ingénierie.
Pour ces raisons, Bi et al.[93] ont proposé un nouveau modèle de couplage entièrement analytique basé sur le transfert thermique d'un système de particules sphériques en contact ponctuel. Leur terme de couplage se calcule selon l'équation suivante :

$$\lambda_{coupl} = \frac{2}{3} \frac{(D+d_p)}{d_p} \left(\frac{2\lambda_p \lambda_g}{\lambda_g - \lambda_p} \right) [1 - \frac{D+d_p}{d_p} \frac{\lambda_p}{\lambda_g - \lambda_p} \ln(1 + \frac{\lambda_g - \lambda_p}{\lambda_p} \frac{d_p}{D+d_p}) \tag{I.45}$$

avec D le diamètre moyen des pores, d_p le diamètre des nanoparticules de silice, λ_g la conductivité thermique gazeuse, λ_p la conductivité thermique des nanoparticules de silice.

Ce modèle est beaucoup plus pratique, car il ne nécessite aucune intégration numérique. Il se base sur des paramètres géométriques simples (taille de pores et de particules) et sur la conductivité solide et gazeuse. Le modèle a été validé par de nombreuses comparaisons avec des données expérimentales. Néanmoins, les modèles de couplage présentés ci-dessus font intervenir un facteur constant qui tient compte de la connectivité du réseau solide, respectivement $\frac{3}{2}(1-\Pi)$ dans le modèle de Swimm et $\frac{2}{3}$ dans le modèle de Bi. Ce facteur est délicat à déterminer et dépend en théorie de la connectivité du squelette de l'aérogel et ne peut donc être considéré comme constant.

À noter que le terme λ_{coupl} correspond à la contribution du couplage à la conductivité thermique effective. Il est souvent entièrement inclus dans le terme de conduction gazeuse car il se manifeste avec la pression de l'air, on parle alors de conductivité thermique gazeuse effective.

I.5.3.c Modèles de conductivité radiative

Pour un aérogel optiquement épais, le transfert radiatif est décrit par la diffusion des photons. La conductivité radiative λ_r s'exprime à partir de l'équation de Rosseland :

$$\lambda_r = \frac{16n^2\sigma}{3\rho e *_R (T)} T^3 \tag{I.46}$$

avec n l'indice de réfraction de l'aérogel, σ la constante de Stephan-Boltzmann, T la température, ρ la densité apparente de l'aérogel et $e *_R$ le coefficient d'extinction spécifique effectif moyen de Rosseland. L'indice de réfraction se calcule d'après la relation de Claussius-Mossotti [94] et vaut environ 1,03. Le coefficient $e *_R$ dépend du libre parcours moyen des photons dans le matériau et de la température et se calcule à partir de l'équation suivante :

$$\frac{1}{e_R * (T)} = \int_0^\infty \frac{1}{e * (\Lambda)} \frac{\partial E_{b\Lambda}}{\partial E_b} d\Lambda \tag{I.47}$$

avec $e * (\Lambda)$ l'extinction effective spécifique, Λ la longueur d'onde du rayonnement, $E_{b\Lambda}$ est l'exitance énergétique spectrale du corps noir, et E_b l'exitance énergétique totale du corps noir. D'après la loi de Planck, on a :

$$\frac{\partial E_b(\Lambda)}{\partial E_b} = \frac{15}{4\pi^4 z^6} \frac{e^{1/z}}{\left(e^{\frac{1}{z}} - 1\right)^2} \tag{I.48}$$

$$z = \frac{k_B T}{hc} \Lambda \tag{I.49}$$

avec k_B la constante de Boltzmann, T la température, h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière et Λ la longueur d'onde du rayonnement. Le terme de droite de l'équation (I.48) est appelé fonction de Rosseland, elle détermine la répartition énergétique spectrale du rayonnement thermique à une température donnée.

Les équations (I.47),(I.48),(I.49) permettent de calculer $e_R * (T)$ à partir de $e * (\Lambda)$ (Figure I.5-9).

En général, $e * (\Lambda)$ peut être obtenu par des mesures expérimentales en transmission infrarouge à partir de la loi de Beer-Lamber (I.50), ou bien par simulations numériques à partir des indices de réfraction complexes du matériau selon différentes méthodes (*Mie theory* [95], *T-matrix* [96], *Discrete Dipole Approximation* [97]*, Anomalous Diffraction Theory* [98]*).*

$$e * (\Lambda) = -\frac{\ln(\tau_\Lambda)}{d.\rho} \tag{I.50}$$

avec τ_Λ la transmittance du matériau, d son épaisseur et ρ sa densité.
Le tableau ci-dessous donne les valeurs de $e_R*(\mathrm{T})$ à 300K pour différents types d'aérogel d'après [81].

Nature de l'aérogel	e_R* **(m² · kg^{-1}) à 300 K**
Silice	22,7
Silice opacifiée	84,2
Organique	47-50
Carbone	>1000

Tableau I.5-1 : Coefficient d'extinction spécifique moyen de Rosseland

Pour les aérogels optiquement épais, e_R* est pratiquement indépendant de la température.
L'équation de conductivité radiative de Rosseland (I.46) est basée sur l'épaisseur optique du matériau. Elle n'est valide que lorsque le matériau est optiquement épais, mais en toute rigueur, ce n'est jamais le cas à proximité des frontières [99]. Pour mieux décrire les situations réelles avec la prise en compte de la proximité des frontières, l'approximation de Rosseland peut être améliorée :

$$\lambda_r = \frac{16n^2\sigma.d}{3\rho e*_R(T).d + 4(\frac{1}{\varepsilon_1}+\frac{1}{\varepsilon_2}-1)}T^3 \qquad (I.51)$$

avec ε_1 , ε_2 les émissivités aux interfaces et d l'épaisseur de l'échantillon. L'équation de Rosseland modifiée prend en compte les frontières et présente une dépendance à l'épaisseur du matériau. C'est ce que l'on appelle « effet d'épaisseur », discuté plus en détail dans les références [100]–[103].

I.5.4 Extension des modèles aux *blankets* aérogels

Les modèles présentés ci-dessus sont robustes et extrêmement utilisés dans la littérature pour la détermination de la conductivité thermique de l'aérogel de silice. Néanmoins, on a vu dans le paragraphe « *blanket* aérogel » que l'aérogel de silice natif n'était pas le plus adapté pour l'isolation thermique du bâtiment. Le *blanket* aérogel quant à lui, a un potentiel d'application beaucoup plus fort dans la super isolation thermique. Il s'est énormément développé depuis sa première commercialisation en 2003 et son avenir est très prometteur. Il est donc intéressant d'étendre les modèles de prévision de conductivité thermique à ces matériaux.
La présence d'une phase fibreuse dans le matériau aérogel modifie le transfert thermique de plusieurs façons :

- Les fibres vont créer de nouveaux chemins de conduction solide à travers le matériau. Potentiellement, la conduction solide devrait augmenter en fonction de la proportion de fibres.

- La présence des fibres lors du séchage du gel composite mène à un matériau plus fracturé que l'aérogel natif. Le manque d'adhérence entre la phase fibreuse et la phase aérogel est à l'origine de macropores. La distribution poreuse est modifiée, ainsi donc que la conduction gazeuse, qui devrait être augmentée.
- Les fibres modifient l'extinction effective du matériau. Contrairement aux particules de silice, les fibres utilisées ont généralement un diamètre du même ordre de grandeur que les rayonnements infrarouges (2- 30 µm) et vont diffuser les rayonnements. Elles ont le même effet qu'un opacifiant dans une certaine mesure.

Les premiers travaux mentionnant les transferts de chaleur dans un *blanket* aérogel sont ceux de Lee et Cunnington [104]. La prise en compte des fibres dans le transfert radiatif est modélisée par la théorie « *Anomalous Diffraction Theory* » sur un ensemble de cylindres infinis représentants les fibres. Ils considèrent que la conduction solide due aux fibres est négligeable pour une fraction volumique de fibres inférieure à 10 % étant donné que les fibres sont perpendiculaires aux flux de chaleur et qu'elles sont très peu en contacts. En effet, lorsque l'on réalise un composite mat fibreux/aérogel, la phase aérogel est insérée entre les fibres et diminue le nombre de contacts entre celles-ci. Le chemin phononique des fibres est alors presque infini (Figure I.5-14).

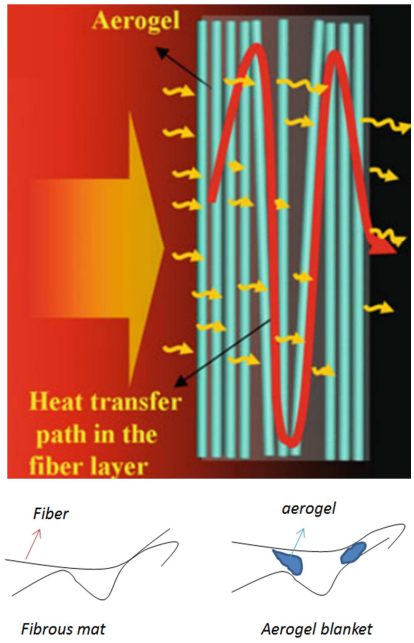


Figure I.5-14: Influence des fibres sur la conduction solide du *blanket*

Si l'on souhaite tout de même modéliser l'influence des fibres dans le transfert thermique, les travaux [105]–[107] résument les modèles couramment utilisés pour prédire la conduction thermique des isolants composites. La Figure I.5-15 illustre les résultats donnés par les modèles les plus intéressants pour le *blanket* aérogel de silice. On voit que de grandes disparités existent entre les modèles.

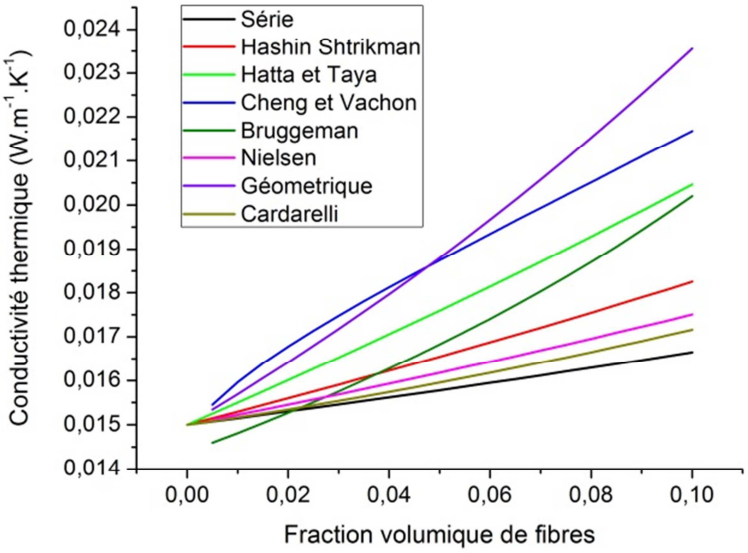


Figure I.5-15: Influence des fibres sur la conductivité thermique d'un matériau composite d'après plusieurs modèles de la littérature. Les courbes ont été tracées pour un aérogel de silice de conductivité thermique 0,015 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ et des fibres de verre perpendiculaires au flux de chaleur. L'influence des fibres sur le transfert radiatif est ici négligée.

Plus récemment, Zhao et al.[108] et Wei et al.[109] ont publié des travaux sur les modèles de conductivité thermique des *blankets* aérogels prenant en compte la plupart des phénomènes mentionnés dans le chapitre présent. Zhao et al. calculent le transfert radiatif dans le *blanket* à partir des coefficients de réfraction complexes de l'aérogel et des fibres en utilisant la théorie ADT et l'approximation « *two-flux* ». Ils utilisent ensuite le modèle de Chen pour le transfert de conduction solide et celui de Zeng pour le transfert de conduction gazeuse Wei et al. optent pour une approche semi-expérimentale en déterminant les coefficients d'extinction des fibres et de l'aérogel par mesures FTIR et en calculant le transfert radiatif avec l'approximation de Rosseland. Enfin, ils déterminent la conductivité thermique gazeuse avec le modèle de Zeng et la conductivité thermique solide par un procédé de régression entre leur modèle de conduction et les données expérimentales. Pour ces auteurs, le couplage est calculé sur une géométrie unitaire représentative de la phase aérogel, en utilisant des modèles séries/parallèles modifiés. À l'heure actuelle, la littérature reste très peu fournie sur ces sujets.

I.6 Conclusions sur l'état de l'art

L'émergence des super-isolants à base d'aérogel de silice a débuté dans les années 1990 avec les granules Nanogel de Cabot, puis dans les années 2000 avec les *blankets* Spaceloft d'Aspen et ThermalWrap de Cabot. Aujourd'hui, les *blankets* aérogels qu'ils produisent font intervenir une étape de séchage supercritique dont on a vu les inconvénients (coût, risque, difficulté d'industrialisation) mais qui semble indispensable pour obtenir le matériau final. Les dernières recherches sur les *blankets* aérogels portent sur l'optimisation du processus de fabrication, et en particulier sur cette étape de séchage supercritique. Les travaux de cette thèse s'appuient justement sur un nouveau type de séchage subcritique basé sur un chauffage électromagnétique. Ce procédé de séchage est totalement nouveau dans la synthèse du *blanket* et l'impact de ce séchage sur les propriétés physiques reste méconnu. Le chapitre II de caractérisation du matériau comble ce manque de la littérature.
De plus, contrairement aux *blankets* aérogels du marché qui sont utilisés pour des applications d'isolation fine (10 mm maximum), les *blankets* produits auront vocation à isoler des bâtiments entiers en respectant les réglementations thermiques actuelles. Pour ce faire, des isolants plus épais ont été conçus (jusqu'à 30 mm), ils sont aussi plus résistants d'un point de vue mécanique grâce à l'utilisation de mat de fibres tissées en tant que matrice.

L'état de l'art actuel sur les propriétés physiques des aérogels de silice natifs est très fourni. Depuis le premier symposium sur les aérogels en 1985 [110], de nombreuses études de caractérisations ont fleuri et permettent aujourd'hui de connaître avec confiance les nombreuses propriétés des aérogels ainsi que les méthodes de caractérisation associées. Ces études constituent ainsi un socle solide de connaissance pour l'étude des nouveaux matériaux composites à base d'aérogel de silice. Il en va de même pour la modélisation des transferts thermiques dans l'aérogel de silice natif, sur laquelle on peut s'appuyer pour le *blanket* aérogel de silice. Néanmoins, les récents travaux de modélisation de transfert thermique conjugués avec l'approche l'expérimentale ont permis de démontrer qu'il existait un effet de couplage entre les modes de transfert thermique de conduction solide et gazeuse. Ce nouveau terme de couplage reste encore peu utilisé car difficilement modélisable de manière analytique. Les modèles de couplage de Swimm et al.[89] et de Bi. al. [93] sont les deux seuls modèles analytiques recensés dans la littérature, le reste nécessitant des intégrations numériques complexes et peu propices pour une estimation rapide. Les tout derniers travaux à ce sujet sont ceux de Swimm et al. [90] qui ont proposé une méthode expérimentale pour déterminer ce terme de couplage pour des aérogels organiques. Dans le cadre de la thèse, nous adapterons cette méthode aux matériaux étudiés pour estimer le terme de couplage des *blanket*s aérogels de silice ainsi que certaines propriétés morphologiques. De manière générale, la littérature des transferts thermiques dans les matériaux aérogels s'arrête aux cas des aérogels de silice natifs, c'est pourquoi nous proposerons dans cette thèse des modèles analytiques de transfert de chaleur dans les *blankets*

aérogels à partir de considérations physiques et géométriques simples inspirées des lois d'homogénéisation des matériaux composites.

RÉFÉRENCES

[1] Energy efficiency trends and policies in the household and tertiary sectors, An Analysis Based on the ODYSSEE and MURE Databases. 2015.

[2] 'RT neuf 2012: Présentation'. [Online]. Available: http://www.rt-batiment.fr/batiments-neufs/reglementation-thermique-2012/presentation.html. [Accessed: 08-Feb-2018].

[3] ADEME, 'Climat, air et énergie', 2015.

[4] K. Kitamura and F. Kimura, 'Heat transfer and fluid flow of natural convection adjacent to upward-facing horizontal plates', Int. J. Heat Mass Transf., vol. 38, no. 17, pp. 3149–3159, Nov. 1995.

[5] D. L. Loveday and A. H. Taki, 'Convective heat transfer coefficients at a plane surface on a full-scale building facade', Int. J. Heat Mass Transf., vol. 39, no. 8, pp. 1729–1742, May 1996.

[6] J. A. Palyvos, 'A survey of wind convection coefficient correlations for building envelope energy systems' modeling', Appl. Therm. Eng., vol. 28, no. 8–9, pp. 801–808, Jun. 2008.

[7] L. Xing, Estimations of undisturbed ground temperatures using numerical and analytical modeling. Oklahoma State University, 2014.

[8] L. Adelard, F. Pignolet-Tardan, T. Mara, P. Lauret, F. Garde, and H. Boyer, 'Sky temperature modelisation and application in building simulation', Renew. Energy, 1998.

[9] H. M. Künzel, 'Simultaneous heat and moisture transport in building components', One-Two-Dimens. Calc. Using Simple Parameters IRB-Verl. Stuttg., 1995.

[10] P. O. Fanger and others, 'Thermal comfort. Analysis and applications in environmental engineering.', Therm. Comf. Anal. Appl. Environ. Eng., 1970.

[11] A. P. Gagge, A. Fobelets, and L. Berglund, 'A standard predictive index of human response to the thermal environment', ASHRAE TransUnited States, vol. 92, no. CONF-8606125-, 1986.

[12] N. Azer and S. Hsu, 'The prediction of thermal sensation from a simple model of human physiological regulatory response', ASHRAE Trans, vol. 83, no. Pt 1, 1977.

[13] © ACERMI, 'Les référentiels ACERMI', ACERMI. [Online]. Available: http://www.acermi.com/documents-reference/referentiels-acermi/. [Accessed: 12-Dec-2017].

[14] C. Luo, B. Moghtaderi, H. Sugo, and A. Page, 'Time lags and decrement factors under air-conditioned and free-floating conditions for multi-layer materials', in Proceedings of the Building Simulation 2007 Conference, Beijing, China, 2007, pp. 95–100.

[15] E. ISO, '13786: 2007', Therm. Perform. Build. Components–Dynamic Therm. Charact. Methods, 2007.

[16] A. Gagliano, F. Patania, F. Nocera, and C. Signorello, 'Assessment of the dynamic thermal performance of massive buildings', Energy Build., vol. 72, pp. 361–370, Apr. 2014.

[17] H. Asan, 'Effects of wall's insulation thickness and position on time lag and decrement factor', Energy Build., vol. 28, no. 3, pp. 299–305, Nov. 1998.

[18] H. Asan and Y. S. Sancaktar, 'Effects of Wall's thermophysical properties on time lag and decrement factor', Energy Build., vol. 28, no. 2, pp. 159–166, Oct. 1998.

[19] Ö. Kaşka, R. Yumrutaş, and O. Arpa, 'Theoretical and experimental investigation of total equivalent temperature difference (TETD) values for building walls and flat roofs in Turkey', Appl. Energy, vol. 86, no. 5, pp. 737–747, May 2009.

[20] R. Yumrutaş, Ö. Kaşka, and E. Yıldırım, 'Estimation of total equivalent temperature difference values for multilayer walls and flat roofs by using periodic solution', Build. Environ., vol. 42, no. 5, pp. 1878–1885, 2007.

[21] K. J. Kontoleon and E. A. Eumorfopoulou, 'The influence of wall orientation and exterior surface solar absorptivity on time lag and decrement factor in the Greek region', Renew. Energy, vol. 33, no. 7, pp. 1652–1664, Jul. 2008.

[22] K. Ulgen, 'Experimental and theoretical investigation of effects of wall's thermophysical properties on time lag and decrement factor', Energy Build., vol. 34, no. 3, pp. 273–278, 2002.

[23] I. Mandilaras, M. Stamatiadou, D. Katsourinis, G. Zannis, and M. Founti, 'Experimental thermal characterization of a Mediterranean residential building with PCM gypsum board walls', Build. Environ., vol. 61, pp. 93–103, 2013.

[24] S. E. Kalnæs and B. P. Jelle, 'Vacuum insulation panel products: A state-of-the-art review and future research pathways', Appl. Energy, vol. 116, pp. 355–375, 2014.

[25] H. Simmler et al., 'Vacuum Insulation Panels. Study on VIP-components and panels for service life prediction of VIP in building applications (Subtask A)', IEAECBCS Annex, vol. 39, 2005.

[26] S. Kistler, 'Coherent expanded-aerogels', J. Phys. Chem., vol. 36, no. 1, pp. 52–64, 1932.

[27] Kistler SS, 'Method of making aerogel. Patent US 2249767 assigned to Mosanto Chemical Co', 22-Jul-1941.

[28] Kistler SS, 'Water-repellent aerogels. Patent US2805961.', 10-Sep-1957.

[29] J. Peri, 'Infrared study of OH and NH2 groups on the surface of a dry silica aerogel', J. Phys. Chem., vol. 70, no. 9, pp. 2937–2945, 1966.

[30] G. Nicolaon and S. Teichner, 'Preparation of silica aerogels from methyl orthosilicate in alcoholic medium, and their properties', Bull Soc Chim, pp. 1906–1911, 1968.

[31] R. Pekala, 'Organic aerogels from the polycondensation of resorcinol with formaldehyde', J. Mater. Sci., vol. 24, no. 9, pp. 3221–3227, 1989.

[32] D. M. Smith, R. Deshpande, and C. J. Brinke, 'Preparation of low-density aerogels at ambient pressure', in MRS Proceedings, 1992, vol. 271, p. 567.

[33] S. S. Prakash, C. J. Brinker, A. J. Hurd, and S. M. Rao, 'Silica aerogel films prepared at ambient pressure by using surface derivatization to induce reversible drying shrinkage', Nature, vol. 374, no. 6521, p. 439, 1995.

[34] S. Haereid, M.-A. Einarsrud, and G. W. Scherer, 'Mechanical strengthening of TMOS-based alcogels by aging in silane solutions', J. Sol-Gel Sci. Technol., vol. 3, no. 3, pp. 199–204, 1994.

[35] S. D. Bhagat, C.-S. Oh, Y.-H. Kim, Y.-S. Ahn, and J.-G. Yeo, 'Methyltrimethoxysilane based monolithic silica aerogels via ambient pressure drying', Microporous Mesoporous Mater., vol. 100, no. 1, pp. 350–355, 2007.

[36] J. Poco, P. Coronado, R. Pekala, and L. Hrubesh, 'A rapid supercritical extraction process for the production of silica aerogels', MRS Online Proc. Libr. Arch., vol. 431, 1996.

[37] 'Industrial Aerogel Insulation – Aspen Aerogels'. [Online]. Available: http://www.aerogel.com/. [Accessed: 24-Mar-2016].

[38] J. Kuhn, T. Gleissner, M. Arduini-Schuster, S. Korder, and J. Fricke, 'Integration of mineral powders into SiO2 aerogels', J. Non-Cryst. Solids, vol. 186, pp. 291–295, 1995.

[39] A. Santos, M. Ajbary, J. A. Toledo-Fernández, V. Morales-Flórez, A. Kherbeche, and L. Esquivias, 'Reactivity of CO2 traps in aerogel–wollastonite composites', J. Sol-Gel Sci. Technol., vol. 48, no. 1–2, pp. 224–230, 2008.

[40] H. Wu, Y. Chen, Q. Chen, Y. Ding, X. Zhou, and H. Gao, 'Synthesis of flexible aerogel composites reinforced with electrospun nanofibers and microparticles for thermal insulation', J. Nanomater., vol. 2013, p. 10, 2013.

[41] M. M. Kulkarni, R. Bandyopadhyaya, B. Bhattacharya, and A. Sharma, 'Microstructural and mechanical properties of silica–PEPEG polymer composite xerogels', Acta Mater., vol. 54, no. 19, pp. 5231–5240, 2006.

[42] M. A. B. Meador et al., 'Cross-linking amine-modified silica aerogels with epoxies: mechanically strong lightweight porous materials', Chem. Mater., vol. 17, no. 5, pp. 1085–1098, 2005.

[43] T. Li and T. Wang, 'Preparation of silica aerogel from rice hull ash by drying at atmospheric pressure', Mater. Chem. Phys., vol. 112, no. 2, pp. 398–401, 2008.

[44] Q. Tang and T. Wang, 'Preparation of silica aerogel from rice hull ash by supercritical carbon dioxide drying', J. Supercrit. Fluids, vol. 35, no. 1, pp. 91–94, 2005.

[45] L. Pauling, The Nature of the Chemical Bond..., vol. 260. Cornell university press Ithaca, NY, 1960.

[46] A. V. Rao, G. Pajonk, U. K. Bangi, A. P. Rao, and M. M. Koebel, 'Sodium silicate based aerogels via ambient pressure drying', in Aerogels Handbook, Springer, 2011, pp. 103–124.

[47] S. Haereid, E. Nilsen, and M.-A. Einarsrud, 'Properties of silica gels aged in TEOS', J. Non-Cryst. Solids, vol. 204, no. 3, pp. 228–234, 1996.

[48] E. D. Egeberg and J. Engell, 'Freeze drying of silica gels prepared from siliciumethoxid', J. Phys. Colloq., vol. 50, no. C4, pp. C4–23, 1989.

[49] G. Hayase, K. Kanamori, A. Maeno, H. Kaji, and K. Nakanishi, 'Dynamic spring-back behavior in evaporative drying of polymethylsilsesquioxane monolithic gels for low-density transparent thermal superinsulators', J. Non-Cryst. Solids, vol. 434, pp. 115–119, 2016.

[50] M. Schneider and A. Baiker, 'Aerogels in catalysis', Catal. Rev., vol. 37, no. 4, pp. 515–556, 1995.

[51] M. J. Burchell et al., 'Characteristics of cometary dust tracks in Stardust aerogel and laboratory calibrations', Meteorit. Planet. Sci., vol. 43, no. 1–2, pp. 23–40, Feb. 2008.

[52] D. L. Bernik, 'Silicon based materials for drug delivery devices and implants', Recent Pat. Nanotechnol., vol. 1, no. 3, pp. 186–192, 2007.

[53] S. M. Jones, 'Aerogel: Space exploration applications', J. Sol-Gel Sci. Technol., vol. 40, no. 2–3, pp. 351–357, Dec. 2006.

[54] R. Gerlach, O. Kraus, J. Fricke, P.-C. Eccardt, N. Kroemer, and V. Magori, 'Modified SiO2 aerogels as acoustic impedance matching layers in ultrasonic devices', J. Non-Cryst. Solids, vol. 145, pp. 227–232, Jan. 1992.

[55] C. Langlais and S. Klarsfeld, 'Isolation thermique à température ambiante. Propriétés', Tech. Ing. Matér. Fonct., vol. 1, no. BE9860, 2004.

[56] F. Hoffmann, M. Cornelius, J. Morell, and M. Fröba, 'Silica-based mesoporous organic–inorganic hybrid materials', Angew. Chem. Int. Ed., vol. 45, no. 20, pp. 3216–3251, 2006.

[57] K. Kanamori, M. Aizawa, K. Nakanishi, and T. Hanada, 'New Transparent Methylsilsesquioxane Aerogels and Xerogels with Improved Mechanical Properties', Adv. Mater., vol. 19, no. 12, pp. 1589–1593, Jun. 2007.

[58] G. Zu et al., 'Transparent, Superflexible Doubly Cross-Linked Polyvinylpolymethylsiloxane Aerogel Superinsulators via Ambient Pressure Drying', ACS Nano, vol. 12, no. 1, pp. 521–532, Jan. 2018.

[59] A. V. Rao, S. D. Bhagat, H. Hirashima, and G. Pajonk, 'Synthesis of flexible silica aerogels using methyltrimethoxysilane (MTMS) precursor', J. Colloid Interface Sci., vol. 300, no. 1, pp. 279–285, 2006.

[60] J. Cai et al., 'Cellulose-Silica Nanocomposite Aerogels by In Situ Formation of Silica in Cellulose Gel', Angew. Chem., vol. 124, no. 9, pp. 2118–2121, Feb. 2012.

[61] M. A. B. Meador, L. A. Capadona, L. McCorkle, D. S. Papadopoulos, and N. Leventis, 'Structure−Property Relationships in Porous 3D Nanostructures as a Function of Preparation Conditions: Isocyanate Cross-Linked Silica Aerogels', Chem. Mater., vol. 19, no. 9, pp. 2247–2260, May 2007.

[62] B. N. Nguyen et al., 'Tailoring Elastic Properties of Silica Aerogels Cross-Linked with Polystyrene', ACS Appl. Mater. Interfaces, vol. 1, no. 3, pp. 621–630, Mar. 2009.

[63] J. P. Randall, M. A. B. Meador, and S. C. Jana, 'Tailoring Mechanical Properties of Aerogels for Aerospace Applications', ACS Appl. Mater. Interfaces, vol. 3, no. 3, pp. 613–626, Mar. 2011.

[64] H. Guo et al., 'Polyimide Aerogels Cross-Linked through Amine Functionalized Polyoligomeric Silsesquioxane', ACS Appl. Mater. Interfaces, vol. 3, no. 2, pp. 546–552, Feb. 2011.

[65] J. K. Lee, G. L. Gould, and W. Rhine, 'Polyurea based aerogel for a high performance thermal insulation material', J. Sol-Gel Sci. Technol., vol. 49, no. 2, pp. 209–220, 2009.

[66] M. Ozisik, Radiative Heat Transfer. Wiley, New York, 1973.

[67] G. Chen, Nanoscale energy transport and conversion: a parallel treatment of electrons, molecules, phonons, and photons. Oxford University Press, 2005.

[68] C. Dames and G. Chen, 'Theoretical phonon thermal conductivity of Si/Ge superlattice nanowires', J. Appl. Phys., vol. 95, no. 2, pp. 682–693, Jan. 2004.

[69] M. G. Kaganer, Thermal insulation in cryogenic engineering. Israel Program for Scientific Translations, 1969.

[70] Heinemann U., Caps R., and Fricke J., 'Radiation-conduction interaction:an investigation on silica aerogels', Int J Heat Mass Transf., vol. 39, no. 10, pp. 2115–2130, 1996.

[71] S. Q. Zeng, A. Hunt, and R. Greif, 'Theoretical modeling of carbon content to minimize heat transfer in silica aerogel', J. Non-Cryst. Solids, vol. 186, pp. 271–277, Jun. 1995.

[72] H.-P. Ebert, 'Thermal properties of aerogels', in Aerogels handbook, Springer, 2011, pp. 537–564.

[73] X.-D. Wang, D. Sun, Y.-Y. Duan, and Z.-J. Hu, 'Radiative characteristics of opacifier-loaded silica aerogel composites', J. Non-Cryst. Solids, vol. 375, pp. 31–39, Sep. 2013.

[74] J.-J. Zhao et al., 'Optical and radiative properties of infrared opacifier particles loaded in silica aerogels for high temperature thermal insulation', Int. J. Therm. Sci., vol. 70, pp. 54–64, Aug. 2013.

[75] U. Heinemann, 'Influence of Water on the Total Heat Transfer in "Evacuated" Insulations', Int. J. Thermophys., vol. 29, no. 2, pp. 735–749, Apr. 2008.

[76] H. Schwab, U. Heinemann, A. Beck, H.-P. Ebert, and J. Fricke, 'Dependence of thermal conductivity on water content in vacuum insulation panels with fumed silica kernels', J. Therm. Envel. Build. Sci., vol. 28, no. 4, pp. 319–326, 2005.

[77] D. Dan, H. Zhang, and W.-Q. Tao, 'Effective structure of aerogels and decomposed contributions of its thermal conductivity', Appl. Therm. Eng., vol. 72, no. 1, pp. 2–9, Nov. 2014.

[78] S. Zeng, A. Hunt, and R. Greif, 'Geometric structure and thermal conductivity of porous medium silica aerogel', J. Heat Transf., vol. 117, no. 4, pp. 1055–1058, 1995.

[79] T. Xie, Y.-L. He, and Z.-J. Hu, 'Theoretical study on thermal conductivities of silica aerogel composite insulating material', Int. J. Heat Mass Transf., vol. 58, no. 1–2, pp. 540–552, Mar. 2013.

[80] O. Nilsson, G. Rüschenpöhler, J. Gross, and J. Fricke, 'Correlation between thermal conductivity and elasto-mechanical properties of compressed porous media', High Temp. High Press., vol. 21, no. 3, pp. 267–274, 1989.

[81] L. Kocon and J. Phalippou, Caracterisation des Proprietes des Aerogels. Ed. Techniques Ingénieur.

[82] P. J. W. Debye, W. Nernst, M. Smoluchowski, A. Sommerfeld, and H. A. Lorentz, Vorträge über die kinetische Theorie der Materie und der Elektrizität, vol. 6. BG Teubner, 1914.

[83] C. Bi and G. Tang, 'Effective thermal conductivity of the solid backbone of aerogel', Int. J. Heat Mass Transf., vol. 64, pp. 452–456, 2013.

[84] P. Scheuerpflug, H.-J. Morper, and G. Neubert, 'Low-temperature thermal transport in silica aerogels', J. Phys. Appl. Phys., vol. 24, no. 8, p. 1395, 1991.

[85] K. Kamiuto, 'Combined conductive and radiative heat transfer through evacuated silica aerogel layers', Int. J. Sol. Energy, vol. 9, no. 1, pp. 23–33, 1990.

[86] R. Coquard, D. Baillis, V. Grigorova, F. Enguehard, D. Quenard, and P. Levitz, 'Modelling of the conductive heat transfer through nano-structured porous silica materials', J. Non-Cryst. Solids, vol. 363, pp. 103–115, Mar. 2013.

[87] K. Swimm, G. Reichenauer, S. Vidi, and H.-P. Ebert, 'Gas Pressure Dependence of the Heat Transport in Porous Solids with Pores Smaller than 10 μm', Int. J. Thermophys., vol. 30, no. 4, pp. 1329–1342, Aug. 2009.

[88] S. Zhao, B. Zhang, and X. He, 'Temperature and pressure dependent effective thermal conductivity of fibrous insulation', Int. J. Therm. Sci., vol. 48, no. 2, pp. 440–448, 2009.

[89] K. Swimm, G. Reichenauer, S. Vidi, and H.-P. Ebert, 'Gas pressure dependence of the heat transport in porous solids with pores smaller than 10 μm', Int. J. Thermophys., vol. 30, no. 4, pp. 1329–1342, 2009.

[90] K. Swimm, G. Reichenauer, S. Vidi, and H.-P. Ebert, 'Impact of thermal coupling effects on the effective thermal conductivity of aerogels', J. Sol-Gel Sci. Technol., vol. 84, no. 3, pp. 466–474, Dec. 2017.

[91] F. Hemberger, S. Weis, G. Reichenauer, and H.-P. Ebert, 'Thermal Transport Properties of Functionally Graded Carbon Aerogels', Int. J. Thermophys., vol. 30, no. 4, pp. 1357–1371, Aug. 2009.

[92] J.-J. Zhao, Y.-Y. Duan, X.-D. Wang, and B.-X. Wang, 'Effects of solid–gas coupling and pore and particle microstructures on the effective gaseous thermal conductivity in aerogels', J. Nanoparticle Res., vol. 14, no. 8, Aug. 2012.

[93] C. Bi, G. H. Tang, Z. J. Hu, H. L. Yang, and J. N. Li, 'Coupling model for heat transfer between solid and gas phases in aerogel and experimental investigation', Int. J. Heat Mass Transf., vol. 79, pp. 126–136, Dec. 2014.

[94] G. Poelz, 'Aerogel in High Energy Physics', in Aerogels, vol. 6, J. Fricke, Ed. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1986, pp. 176–187.

[95] Y. Xu, 'Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres: far field', Appl. Opt., vol. 36, no. 36, pp. 9496–9508, 1997.

[96] P. Waterman, 'Matrix formulation of electromagnetic scattering', Proc. IEEE, vol. 53, no. 8, pp. 805–812, 1965.

[97] E. M. Purcell and C. R. Pennypacker, 'Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains', Astrophys. J., vol. 186, pp. 705–714, 1973.

[98] X. Sun, H. Tang, and G. Yuan, 'Anomalous diffraction approximation method for retrieval of spherical and spheroidal particle size distributions in total light scattering', J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf., vol. 109, no. 1, pp. 89–106, 2008.

[99] M. Huetz-Aubert, S. Klarsfeld, and P. De Dianous, 'Rayonnement thermique des matériaux semi-transparents', Tech. L'Ingénieur BE B 8 215, pp. 1–38, 1995.

[100] B. G. Rennex, 'Thermal parameters as a function of thickness for combined radiation and conduction heat transfer in low-density insulation', J. Build. Phys., vol. 3, no. 1, pp. 37–61, 1979.

[101] M. Hollingsworth, 'Experimental determination of the thickness effect in glass fiber building insulation', in Thermal insulation performance, ASTM International, 1980.

[102] C. M. Pelanne, 'Discussion on Experiments to Separate the "Effect of Thickness" from Systematic Equipment Errors in Thermal Transmission Measurements', in Thermal Insulation Performance, ASTM International, 1980.

[103] C. J. Shirtliffe, 'Effect of thickness on the thermal properties of thick specimens of low-density thermal insulation', in Thermal Insulation Performance, ASTM International, 1980.

[104] S.-C. Lee and G. R. Cunnington, 'Conduction and Radiation Heat Transfer in High-Porosity Fiber Thermal Insulation', J. Thermophys. Heat Transf., vol. 14, no. 2, pp. 121–136, Apr. 2000.

[105] D. M. Dawson and A. Briggs, 'Prediction of the thermal conductivity of insulation materials', J. Mater. Sci., vol. 16, no. 12, pp. 3346–3356, 1981.

[106] Jean-Pierre Vassal, 'Contribution à la modélisation des propriétés physiques et rhéologiques des milieux fibreux', 2007.

[107] F. Cardarelli, Materials handbook: a concise desktop reference. Springer Science & Business Media, 2008.

[108] J.-J. Zhao, Y.-Y. Duan, X.-D. Wang, and B.-X. Wang, 'Radiative properties and heat transfer characteristics of fiber-loaded silica aerogel composites for thermal insulation', Int. J. Heat Mass Transf., vol. 55, no. 19–20, pp. 5196–5204, Sep. 2012.

[109] G. Wei, Y. Liu, X. Zhang, F. Yu, and X. Du, 'Thermal conductivities study on silica aerogel and its composite insulation materials', Int. J. Heat Mass Transf., vol. 54, no. 11–12, pp. 2355–2366, May 2011.

[110] J. Fricke, Ed., Aerogels, vol. 6. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1986.

II. Caractérisation expérimentale des *blankets* aérogels de silice

Table des matières

Introduction....84

II.1.Présentation des blankets aérogels étudiés....85

II.1.1. Procédé de fabrication....85
II.1.2. Matériaux étudiés....86

II.2.Méthodes expérimentales et protocoles de mesure....88

II.2.1. Caractérisation structurale....88

II.2.1.a. Analyse par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier....88

i. Principe....88

ii. Appareillage....89

iii. Protocole pour la détermination des propriétés optiques infrarouges du matériau....89

iv. Protocole pour obtenir la signature spectrale d'un échantillon....92

II.2.2. Caractérisation texturale....92

II.2.2.a. Mesure de masse volumique apparente....93

i. Principe du pycnomètre à poudre....93

ii. Appareillage....94

iii. Protocole de mesure....94

II.2.2.b. Calcul de la porosité....95
II.2.2.c. Mesure des fractions volumiques et massiques des fibres....95
II.2.2.d. Microscopie électronique à balayage....95

i. Principe....95

ii. Appareillage....96

iii. Protocole de mesure....97

II.2.2.e. Tomographie X....97

i. Principe....97

ii. Appareillage....98

iii. Protocole de mesure....98

II.2.2.f. Porosimétrie par sorption d'azote....99

i. Principe....99

ii. Calcul du volume total de pores....100

iii. Calcul de la surface spécifique 102
iv. Calcul de la taille des pores et de la distribution poreuse 102
v. Compression isostatique de l'aérogel lors de la mesure 103
vi. Fermeture de l'hystérésis lors de la désorption – Tensile Strength Effect (TSE)- . 104
vii. Effet du réseau poreux 104
viii. Appareillage 105
ix. Protocole de mesure 105
II.2.3. Caractérisation thermique 106
II.2.3.a. Détermination de la conductivité thermique par méthode fluxmétrique 108
i. Principe 108
ii. Appareillage 108
iii. Protocole de mesure 109
iv. Extension aux mesures sous vide 110
v. Extension aux mesures d'échantillons de petite taille (Microfluxmètre) 110
vi. Mesure de conductivité thermique d'un matériau humide 111
II.2.3.b. Détermination de la chaleur spécifique par calorimétrie différentielle à balayage 112
i. Principe 112
ii. Appareillage 113
iii. Protocole de mesure 113
II.2.4. Caractérisation hydrique 114
II.2.4.a. Mesure de la teneur en eau 114
i. Principe 114
ii. Appareillage 115
iii. Protocole de mesure 116
II.2.4.b. Mesure d'angle de contact avec une goutte d'eau 116
i. Principe 116
ii. Appareillage 117
iii. Protocole de mesure 117
II.2.4.c. Mesure des propriétés de transfert d'humidité 117

Transfert de vapeur d'eau....117
i. Principe....117
ii. Appareillage....118
iii. Protocole de mesure....119
Transfert d'eau liquide....119
i. Principe....119
ii. Appareillage....119
iii. Protocole de mesure....120
II.2.5. Caractérisation mécanique....120
II.2.5.a. Compression uniaxiale....121
i. Principe....121
ii. Appareillage....121
iii. Protocole de mesure....122
II.2.5.b. Flexion trois points....122
i. Principe....122
ii. Appareillage....123
iii. Protocole de mesure....123
II.2.5.c. Traction perpendiculaire aux faces....123
i. Principe....123
ii. Appareillage....124
iii. Protocole de mesure....124
II.3.Résultats de caractérisation et discussions....125
II.3.1. Caractérisation structurale....125
II.3.1.a. Étude du greffage des liaisons hydrophobes lors de l'étape de modification de surface....125
II.3.1.b. Analyse EDX....128
II.3.2. Caractérisation texturale....130
II.3.2.a. Description texturale générale des matériaux....130
II.3.2.b. Observations morphologiques....133
i. Microscopie électronique à balayage....133

ii. Tomographie à Rayon X....136
II.3.2.c. Caractérisation de la texture poreuse par sorption d'azote....140
i. Détermination de la surface spécifique....140
ii. Analyse de l'isotherme complète....141
II.3.3. Caractérisation hydrique....144
II.3.3.a. Sorption d'eau du matériau....144
II.3.3.b. Mesure de l'angle de contact....146
II.3.3.c. Transfert de vapeur d'eau....147
II.3.4. Caractérisation thermique....149
II.3.4.a. Chaleur spécifique à pression constante....150
II.3.4.b. Conductivité thermique....151
i. Conductivité thermique en conditions ambiantes....151
ii. Remarque importante sur le microfluxmètre....152
iii. Influence de l'humidité....153
iv. Étude de sensibilité au mode de séchage et à l'agent hydrophobant....155
v. Influence de la pression....156
vi. Dégradations mécaniques des blankets....160
II.3.5. Vieillissement hydrique....161
II.3.5.a. Introduction....161
II.3.5.b. Résultats....163
II.3.6. Caractérisation mécanique....166
II.3.6.a. Compression uniaxiale....166
II.3.6.b. Flexion 3 points....168
II.3.6.c. Résistance à la traction perpendiculaire aux faces....170
II.4.Conclusions sur les caractérisations physiques....172
REFERENCES....176

Introduction

Les travaux réalisés dans cette thèse s'ancrent dans le projet de recherche européen H2020 HOMESKIN[1] qui a pour but l'étude et la mise au point pour pré-industrialisation de matériaux super-isolants composites à base d'aérogel de silice pour le bâtiment. Les matériaux en question font partie de la famille des *blankets* aérogels de silice séchés par voie ambiante et sont fabriqués par la société ENERSENS. L'ambition du projet HOMESKIN est d'obtenir un *blanket* aérogel ayant une conductivité thermique $< 0{,}015\ W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ et qui soit compétitif avec les autres matériaux isolants du marché.

Le présent chapitre se divise en trois parties :

- Une partie ayant pour but de décrire les matériaux composites à base d'aérogel de silice issus du projet HOMESKIN.
- Une partie décrivant toutes les méthodes de caractérisation employées durant la thèse ainsi que les aspects scientifiques et techniques à prendre en compte lors des mesures.
- Une partie relatant des résultats de caractérisation thermophysique des matériaux à la sortie du moule de fabrication.

[1] https://homeskin.net/

II.1 Présentation des blankets aérogels étudiés

II.1.1. Procédé de fabrication

Les matériaux étudiés sont fabriqués selon la synthèse sol-gel par voie *alkoxyde*. Cependant, contrairement à ce qui se fait sur le marché des *blankets* aérogels, le séchage du composite n'est pas réalisé en conditions supercritiques comme les *blankets* d'Aspen, ou évaporatives comme les *blankets* de Cabot. Le séchage est ici réalisé par chauffage diélectrique basé sur les recherches de Bonnardel et Chausson [1]. Cette technique constitue une innovation majeure dans le procédé de fabrication des aérogels composites et permet de concurrencer sérieusement les aérogels composites séchés par voie supercritique ou évaporative. En effet, le séchage par chauffage diélectrique permet de s'affranchir des contraintes techniques et financières du séchage supercritique ou de la perte de performance thermique liée au séchage évaporatif. Le chauffage diélectrique aide à contrôler le processus de séchage plus précisément et permet d'obtenir des produits de bonne qualité dans un délai plus court. Lors d'un séchage ambiant par simple évaporation, la chaleur est d'abord transférée à la surface du matériau par conduction, convection ou rayonnement puis à l'intérieur du matériau par pure conduction solide. C'est initialement le solvant à la surface du matériau qui est évaporé, puis, lorsque le solvant restant à l'intérieur du matériau se diffuse vers la surface externe, il est à nouveau évaporé. Le temps de séchage est limité par la vitesse de propagation du flux de chaleur à travers le matériau, déterminé par ses propriétés physiques. Ainsi le séchage par simple évaporation élimine rapidement le solvant en surface du matériau, mais il est inefficace quand il s'agit d'éliminer le solvant confiné à l'intérieur du matériau. Le chauffage diélectrique quant à lui, est plutôt une forme d'énergie électromagnétique. L'énergie électromagnétique interagit simultanément avec toutes les molécules de solvant. Celles-ci absorbent les ondes électromagnétiques menant ainsi à leur échauffement. La majeure partie du liquide est vaporisée avant même de quitter le matériau par la surface extérieure. Il en résulte alors un séchage très rapide sans besoin de surchauffer.

Les avantages sont considérables :

- Économie d'énergie et gain de temps grâce à des séchages plus rapides et à une température de chauffe optimisée.
- Matériau uniforme et meilleure reproductibilité grâce à un séchage homogène.
- Ne nécessite pas de fortes pressions ou de hautes températures.

Cependant, les effets de ce nouveau mode de séchage sur les propriétés physiques du matériau restent inconnus. Le chapitre de caractérisation a donc pour but de répondre à ce manque en analysant les propriétés thermophysiques des matériaux issus du séchage diélectrique et de les comparer avec celles des *blankets* aérogels du marché.

II.1.2. Matériaux étudiés

Au cours de la thèse, plusieurs types de matériaux ont été étudiés. La société Enersens est initialement leader en France dans la fabrication de granules d'aérogel de silice. Elles sont fabriquées de la même façon que les composites aérogels, mais en l'absence de mat fibreux pour maintenir une cohésion macroscopique après séchage, les matériaux se présentent sous forme de granules dont la granularité peut être choisie. Comme la phase aérogel des composites est responsable de leur pouvoir isolant, l'étude des granules d'aérogel de silice présente un intérêt majeur.

Les premiers matériaux composites fabriqués étaient faits à partir d'une matrice de mousse de mélamine mais ont rapidement été abandonnés pour des raisons de tenue à l'humidité. Ensuite, une première génération de *blanket* aérogel de silice à base de fibres de verre ou de fibres PET[2] a été étudiée. Les fibres de verre sont imprégnées d'une résine thermodurcissable (résine phénolique) pour maintenir leur cohésion. Les fibres PET sont liées par thermosoudage, initialement elles sont mélangées avec des fibres polyester ayant un point fusion plus bas que le PET, puis les fibres polyesters sont fondues pour obtenir des points de liantage entre les fibres PET.

Une seconde génération de *blanket* a été fabriquée, à base de laine de fibres de verre aiguilletée et de fibres PET recyclées. Les fibres de verre aiguilletées se présentent sous forme d'une laine de fibres tissée, avec une certaine proportion de fibres dans le sens transverse (fibres aiguilletées) qui améliore la tenue mécanique du composite. Le Tableau II.1-1 montre les matériaux qui seront rencontrés dans le chapitre présent de caractérisation ainsi que leur dénomination dans le reste du chapitre. Les matériaux seront mentionnés le plus souvent via leur dénomination suivie de l'épaisseur correspondante de la matrice (c'est-à-dire de la matrice avant imprégnation par la phase aérogel) ou par la granulométrie dans le cas des granules (ex : Kwark_1000µm, NGF_6mm).

[2] Polytéréphtalate d'éthylène

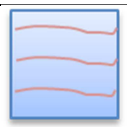
Matériaux		Dénomination
	Granules d'aérogel de silice, granulométrie variable	Kwark
	Composite aérogel de silice réalisé à partir de mousse mélamine	Mousse
	*Blanket* aérogel de silice réalisé à partir d'une laine de fibres de verre.	GF (*glass fibers*)
	Blanket aérogel de silice réalisé à partir d'un mat fibreux PET	PET
	Blanket aérogel de silice réalisé à partir d'une laine de fibres de verre aiguilletée.	NGF (*needled glass fibers*)
	Blanket aérogel de silice réalisé à partir de fibres de PET recyclé	PET recyclé

Tableau II.1-1 : Matériaux étudiés dans le cadre de la thèse

La partie caractérisation portera essentiellement sur le *blanket* NGF, qui est le matériau final retenu par le projet HOMESKIN, mais aussi sur les *blankets* GF et PET 1ère génération qui ont été étudiés lors de la première partie de la thèse. Les autres matériaux ont été caractérisés de manière plus occasionnelle pour tester de nouveaux axes de fabrication.

Figure II.1-1: Principaux b*lankets* aérogels étudiés dans le cadre de la thèse : à base de fibres de verre (gauche), de fibres de PET (milieu), de fibres de verre aiguilletées (droite)

II.2 Méthodes expérimentales et protocoles de mesure

II.2.1. Caractérisation structurale

La caractérisation structurale fait référence à l'étude de la structure chimique du matériau. Elle concerne l'analyse des composés chimiques et des liaisons chimiques constituant le matériau et permet de comprendre les différentes étapes de la synthèse et leur impact sur le matériau final.

II.2.1.a Analyse par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier

i Principe

La spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier –*FTIR*- exploite les interactions entre la matière et le rayonnement infrarouge. Elle permet de sonder les niveaux vibrationnels des molécules pour caractériser aussi bien les groupements chimiques constituant l'échantillon que les propriétés radiatives infrarouges du matériau. L'analyse sera purement qualitative lorsqu'il s'agira d'identifier un composé à partir de sa signature spectrale et quantitative lorsque ce sera pour déterminer les propriétés d'extinction du matériau dans les infrarouges, propriétés étroitement corrélées avec le transfert radiatif à température ambiante.

Le principe du FTIR est d'envoyer un rayonnement infrarouge polychromatique sur l'échantillon et d'observer le rayonnement transmis, absorbé ou diffusé. Pour certaines fréquences bien définies, les groupements chimiques vont absorber une partie de ce rayonnement, les amenant vers des états excités de vibration. Chaque liaison chimique possède sa propre fréquence de vibration ν_0 qui dépend de la constante de raideur de force de la liaison chimique k et de la masse réduite de la molécule μ. Pour une molécule diatomique constituée des atomes de masses m_1 et m_2, la masse réduite est $m_1.m_2/ (m_1+m_2)$. Sa fréquence de vibration est calculée comme ci-dessous :

$$\nu_0 = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{k}{\mu}} \tag{II.1}$$

Dans le cas général, une molécule constituée de N atomes possède trois degrés de mouvement de translation et trois de rotation. Les 3N-6 autres degrés de liberté internes liés à chaque molécule se combinent constructivement pour donner naissance à des mouvements internes qui déforment la molécule sans que celle-ci ne translate ou ne tourne. Ces mouvements sont indépendants les uns des autres et constituent les 3N-6 modes de vibrations internes de la molécule. Il existe une grande variété de modes de vibration moléculaire qui peuvent être classés en deux grands groupes : les vibrations d'élongation et les vibrations de déformation qui se déclinent en fonction de leur symétrie. Le tableau ci-dessous regroupe les modes de vibration couramment rencontrés.

Vibrations d'élongation	νs	Élongation symétrique
	νas	Élongation asymétrique
Vibrations de déformation	δs	Cisaillement symétrique
	δas	Cisaillement asymétrique
	ρ	Rotation
	τ	Torsion
	ω	Balancement

Tableau II.2-1: Modes de vibration des molécules en analyse FTIR

Ainsi, chaque pic d'absorption du spectre infrarouge correspond à un mode de vibration caractéristique d'une liaison chimique.

ii Appareillage

Les spectres infrarouges ont été obtenus au centre PERSEE, Mines ParisTech, avec un spectroscope TENSOR 27 (Bruker), équipé d'un cristal de germanium. Les analyses sont faites dans la région infrarouge moyen (4000 cm^{-1} – 400 cm^{-1}) en mode transmission, absorption ou « *Attenuated total reflectance* » et les données sont traitées par le logiciel Opus (Bruker).

Figure II.2-1: Tensor 27 pour l'analyse par spectroscopie infrarouge, PERSEE, Mines ParisTech

iii Protocole pour la détermination des propriétés optiques infrarouges du matériau

La Figure II.2-2 montre l'interaction entre un matériau diffusant et un rayonnement infrarouge. Une partie du rayonnement incident I_0 est directement absorbée par le matériau (I_{abs}). Si le matériau possède des dimensions caractéristiques proches des longueurs d'onde de rayonnement infrarouge (*e.g.* fibres ou grains), alors il va se mettre à diffuser ce rayonnement de manière anisotropique (I_s). Enfin, le matériau émet son propre rayonnement infrarouge (I_e), fonction de sa température. Le Tableau II.2-1 montre les relations entre les intensités énergétiques et les coefficients radiatifs infrarouges du matériau.

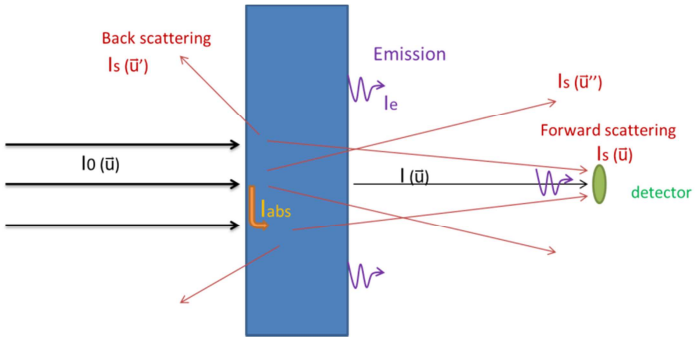


Figure II.2-2: Interaction matière-rayonnement lors d'une mesure FTIR en transmission. **u** représente l'ensemble des directions qui pointent vers le détecteur.

Propriété optique infrarouge	**Détermination de la propriété**
Transmittance	$\tau = \frac{I}{I_0}$
Coefficient d'absorption [m^{-1}]	$K = -\ln(\frac{I_0 - I_{abs}}{I_0})/d$
Coefficient de diffusion [m^{-1}]	$S = -\ln(\frac{I_0 - I_s}{I_0})/d$
Coefficient de diffusion effectif [m^{-1}]	$S^* = -\ln(\frac{I_{0_u} - I_{s_{\forall(u',u'')\neq u}}}{I_{0_u}})/d$
Coefficient d'extinction [m^{-1}]	$E = K + S == -\ln(\frac{I}{I_0})/d$
Coefficient d'extinction effectif [m^{-1}]	$E^* = K + S^* = -\ln(\frac{I_u + I_{s_u}}{I_{0_u}})/d$
Émission propre	$I_e = \varepsilon I_b$

Tableau II.2-2 : Détermination des propriétés infrarouges à partir des mesures FTIR d'un échantillon diffusant. Dans le cas présent, le matériau est considéré comme homogène pour le calcul des coefficients radiatifs infrarouges.

Pour le calcul du coefficient de diffusion, deux cas sont à considérer. Si l'on tient compte des rayonnements diffusés qui atteignent la surface du détecteur, alors le coefficient de diffusion est dit effectif. Il en va de même pour le coefficient d'extinction du matériau. L'émission propre du matériau suit la loi de Planck (avec I_b l'intensité du corps noir à la température considérée et ε son émissivité). Pour des températures ambiantes, ce terme est négligeable et n'est pas pris en compte dans les mesures FTIR.

Dans le cadre de cette thèse, les mesures en transmission ont été effectuées sur des aérogels de silice natifs, et des mats fibreux. Pour un aérogel de silice natif, les mesures en transmission sont effectuées en réduisant 2 mg d'aérogel en poudre, diluée dans 20 mg de Kbr (transparent aux infrarouges). Le mélange est ensuite comprimé dans une presse sous une pression de 5 tonnes $\cdot$ cm^{-2} pour obtenir une pastille. Les mesures FTIR sont effectuées en 16 scans entre les nombres d'onde 4000 cm^{-1} et 400 cm^{-1} (2,5 à 25 microns en longueurs d'onde) après réduction du bruit de fond et avec une résolution de 4 cm^{-1}. L'épaisseur équivalente d de l'aérogel dans la pastille est définie par [2]:

$$d = \frac{m_p \%m_a}{\rho A} \tag{II.2}$$

avec $\%m_a$ la fraction massique d'aérogel dans la pastille, m_p (g) est la masse de la pastille ρ ($g \cdot cm^{-3}$) la densité de l'aérogel, A (cm^2) l'aire de la pastille. Dans le cas de l'aérogel, la taille des nanoparticules est trop petite devant les longueurs d'onde infrarouges pour qu'il y ait diffusion donc le coefficient d'extinction mesuré est environ égal au coefficient d'absorption.

Pour les mats fibreux, il n'est pas possible de les réduire en poudre et de les diluer. La mesure en transmission directe n'est donc pas possible car les échantillons présentent de trop fortes absorptions. Pour contourner ces problèmes, la méthode ATR, *Attenuated Total Reflection,* est employée. Pour cela, l'échantillon est mis en contact avec un prisme optique (cristal ATR), constitué d'un diélectrique non absorbant d'indice de réfraction supérieur à celui de l'échantillon. Le rayonnement incident est envoyé avec un angle suffisamment grand pour permettre une réflexion totale qui s'accompagne de l'émission d'un champ électrique parallèle à la surface de l'échantillon sur une épaisseur de pénétration connue. Ce champ évanescent décroît de manière exponentielle en amplitude dans la direction perpendiculaire à la surface et sonde le milieu sur une fraction de longueur d'onde. S'il existe des modes de vibration actifs en infrarouge dans le milieu, alors il y aura excitation par le champ évanescent de ces modes près de l'interface et donc une absorption d'énergie par ces modes.

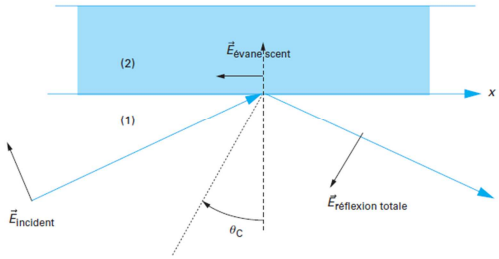


Figure II.2-3: Principe de la mesure ATR. (1) représente le cristal ATR, (2) représente l'échantillon

L'analyse des mats fibreux en mode ATR ne nécessite pas de préparation particulière si ce n'est d'assurer un bon contact entre le cristal ATR et l'échantillon. Les mesures sont effectuées en 16 scans entre 4000 cm^{-1} et 400 cm^{-1} après réduction du bruit de fond et avec une résolution de 4 cm^{-1}. Le spectre ATR est ensuite corrigé par le logiciel afin d'obtenir, le spectre équivalent en transmission. En effet le spectre ATR introduit de légers déplacements des pics vers les basses fréquences, et réduit l'intensité des pics d'absorption de manière proportionnelle à la longueur d'onde. La correction entre le spectre ATR et le spectre en transmission est calculée selon :

$$ATR = -\log(\tau) . \nu . \sqrt{n_{12} \sin^2(\theta) - 1} \frac{C}{N . E^2} \tag{II.3}$$

avec τ la transmittance, ν le nombre d'onde, n_{12} le ratio des indices de réfraction entre le cristal ATR et l'échantillon, θ l'angle d'incidence du rayonnement, C une constante, N le

nombre de réflexions ATR, et E le champ électrique de l'onde évanescente. Parmi ces paramètres, seul l'indice de réfraction de l'échantillon n'est pas déterminé par l'accessoire lui-même. Pour la plupart des matériaux organiques et des fibres de verre, une valeur de 1,5 est choisie.

iv Protocole pour obtenir la signature spectrale d'un échantillon

La détermination de la signature spectrale des échantillons a été faite en mode ATR pour les mats fibreux et en transmission pour les aérogels de silices natifs. Les analyses sont ici purement qualitatives et ne nécessitent pas de correction complexe des spectres, seule la position des pics importe. Les spectres sont tracés avec une résolution de 4 cm^{-1} après correction du bruit de fond et soustraction de la ligne de base. Si besoin, les spectres sont lissés pour une meilleure lecture des pics.

II.2.2. Caractérisation texturale

Le terme texture regroupe les caractéristiques d'un matériau poreux tel que la géométrie de ses particules et de ses pores. Les matériaux poreux possèdent des pores dont les parois sont responsables de l'augmentation de surface spécifique du matériau, influençant également le transfert thermique. La taille des pores est classifiée selon l'IUPAC [3], les pores inférieurs à 2 nm sont appelés micropores, les pores entre 2 et 50 nm sont appelés mésopores, et les pores supérieurs à 50 nm sont des macropores. Dans un grain poreux, on peut trouver différents types de pores (Figure II.2-4):

- Des irrégularités se trouvant à la surface du grain, caractéristique de sa rugosité, ce ne sont pas des pores à proprement parler.
- Des pores ouverts débouchant à la surface du grain
- Des pores fermés, inaccessibles par les fluides
- Des pores borgnes, ouverts sur une seule extrémité
- Des pores en intercommunication

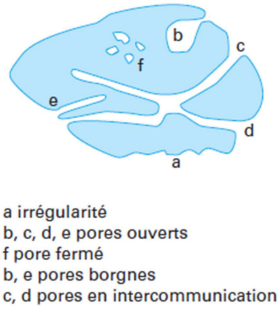


Figure II.2-4 : Schéma d'un grain poreux

Le volume limité par l'enveloppe du grain est appelé volume apparent, car il tient compte du volume des pores. Il peut être déterminé par un pycnomètre à poudre. Les pores ouverts, borgnes et en intercommunication peuvent être détectés par des mesures de porosimétrie. La

porosimétrie azote permet de détecter des pores entre 0,3 nm et 300 nm alors que la porosimétrie au mercure permet de détecter des pores entre 10 nm et 100 µm. Les pores fermés ne peuvent pas être détectés par porosimétrie, mais sont décelables par tomographie X ou diffusion des rayons X aux petits angles. Le volume du squelette solide du grain est généralement déterminé par pycnométrie à hélium. Les techniques de microscopie permettent de décrire qualitativement l'aspect extérieur du matériau (granulaire, fibreux, arrangement des phases), que l'on appelle aussi caractérisation morphologique. En combinant les techniques de caractérisation texturale mentionnées ci-dessus, il est possible de décrire assez finement la texture du matériau. La compréhension du lien texture – synthèse permet l'optimisation des matériaux aérogels en fonction de leurs applications.

II.2.2.a Mesure de masse volumique apparente

La masse volumique apparente ρ ($g \cdot cm^{-3}$) d'un matériau poreux est définie comme le rapport entre sa masse m (g) et son volume apparent V (cm^3):

$$\rho = m/V \tag{II.4}$$

Dans le cas d'échantillons ayant une géométrie simple (cylindrique ou parallélépipédique), le volume est simplement calculé par la mesure de ses dimensions à l'aide d'un pied à coulisse. Pour des échantillons avec des volumes complexes (type granules), un pycnomètre à poudre est utilisé pour déterminer le volume apparent.

i Principe du pycnomètre à poudre

Un pycnomètre à poudre mesure le volume apparent d'un matériau poreux et permet d'en calculer sa densité apparente. On mesure tout d'abord le volume d'une quantité de poudre placée dans un tube à l'aide d'un piston de diamètre intérieur D, s'avançant dans le tube sur une longueur l_0 (Mesure 0) par application d'une force de consolidation. L'échantillon poreux est ensuite placé dans le tube avec la poudre, et le volume est mesuré une nouvelle fois dans les mêmes conditions (Mesure 1). Comme la poudre n'entre pas dans les pores, la différence de volume entre les deux mesures correspond au volume apparent de l'échantillon :

$$V_{app} = V_1 - V_0 = \pi \left(\frac{D}{2}\right)^2 (l_1 - l_0) \tag{II.5}$$

La mesure de la masse de l'échantillon permet ensuite de calculer sa densité apparente.

Pour analyser correctement le volume apparent de l'échantillon, la poudre est tassée par agitation pour épouser correctement la surface externe de l'échantillon. Cependant, aucune poudre ne peut parfaitement épouser la forme d'un échantillon (tel un liquide non mouillant par exemple) et des irrégularités subsistent en surface. En calibrant le pycnomètre à poudre avec un matériau aux propriétés connues, il est possible de compenser ces irrégularités en

multipliant la longueur mesurée par le piston par un facteur de conversion et ainsi obtenir des mesures répétables.

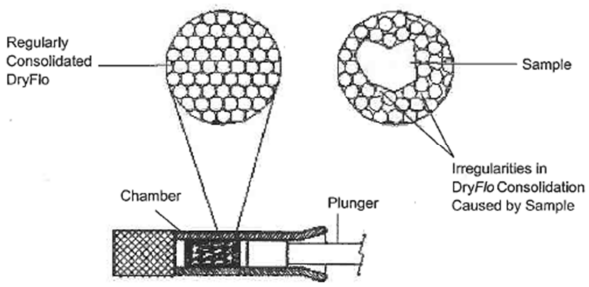


Figure II.2-5: Irrégularités en surface de l'échantillon

ii Appareillage

L'appareillage utilisé est un pycnomètre à poudre Géopyc 1360 (Micrometrics) au centre PERSEE, Mines ParisTech. La poudre utilisée est le DryFlo (Micrometrics) composé de microsphères de graphite et de céramique de granulométrie hétérogène (40 à 230 µm).

Figure II.2-6: Pycnomètre à poudre GéoPyc pour l'analyse de densité, PERSEE, Mines ParisTech

iii Protocole de mesure

Le tube utilisé pour les mesures a un diamètre intérieur de 19,1 mm et le facteur de conversion correspondant est 0,2907 $cm^3 \cdot mm^{-1}$. Le tube est rempli de poudre DryFlo et un cycle à vide est réalisé pour déterminer le volume de poudre utilisé. L'échantillon est ensuite pesé en prenant soin que le volume choisi représente au moins 25 % du volume de poudre. La force de consolidation choisie est 20 N pour le tassement de la poudre, ce qui permet d'avoir un tassement suffisant pour minimiser les irrégularités de surface, tout en minimisant la compression de nos échantillons. Cette force correspond à une pression sur l'échantillon d'environ 0,07 MPa, à comparer avec le module de compressibilité de l'échantillon. Dans le cas de nos aérogels, le module de compressibilité est supérieur à 1,5 MPa, la compression de l'échantillon est donc inférieure à 5 %. Cinq cycles de mesure sont répétés pour obtenir la densité apparente de l'échantillon.

II.2.2.b Calcul de la porosité

À partir de la masse volumique apparente ρ_a et de la masse volumique du squelette ρ_s, la porosité Π se définit comme ci-dessous :

$$\Pi = 1 - \rho_a/\rho_s \tag{II.6}$$

II.2.2.c Mesure des fractions volumiques et massiques des fibres

Dans le cas de matériaux composites à base de fibres, leurs proportions massiques ou volumiques jouent un rôle essentiel dans le transfert de chaleur. Elles se calculent à partir de la densité des mats fibreux non imprégnés et de la densité des matériaux composites.
La fraction massique de fibres $\%m_f$ dans le matériau composite est calculé comme ci-dessous :

$$\%m_f = \frac{m_{mat}}{m_c} \approx \frac{\rho_{mat}}{\rho_c} \tag{II.7}$$

avec m_{mat} la masse du mat fibreux avant imprégnation, m_c la masse du composite après imprégnation, ρ_{mat} la densité du mat fibreux avant imprégnation et ρ_c la densité du matériau composite. Le rapport des masses peut être approximé au rapport des masses volumiques puisque l'imprégnation du mat fibreux par l'aérogel change peu son volume apparent.

La fraction volumique de fibres dans le matériau composite $\%v_f$ est calculé selon :

$$\%v_f = \%m_f.\rho_c\,/\rho_f \tag{II.8}$$

avec ρ_f la densité propre des fibres.

Pour un matériau composite à base d'aérogel de silice, la porosité globale Π (c'est-à-dire le rapport entre le volume d'air et le volume total du composite) se définit comme ci-dessous :

$$\Pi = 1 - \frac{\rho_a}{\rho_s} - \frac{\rho_a}{\rho_f} \tag{II.9}$$

II.2.2.d Microscopie électronique à balayage

i Principe

La microscopie électronique à balayage – *MEB* – permet de visualiser un matériau à des échelles pouvant atteindre le nanomètre. La microscopie électronique utilise un faisceau d'électrons primaires qui bombarde la surface de l'échantillon. Une tension est appliquée pour accélérer les électrons jusqu'à des énergies de 30 keV. L'interaction entre les électrons primaires et la surface de l'échantillon résulte en l'émission d'électrons secondaires qui correspond à la diffusion inélastique des électrons en surface (pénétration < 50 nm). Ces électrons sont éjectés de l'échantillon sous l'effet du bombardement pour atteindre le détecteur *SE (Secondary electrons)*, ils formeront des images avec une haute résolution. La résolution de l'image est déterminée par la qualité du focus du faisceau d'électrons primaires et la surface de l'échantillon.

Les électrons primaires atteignant des couches plus profondes de l'échantillon (50 nm-2 µm) sont rétrodiffusés par le phénomène de diffusion élastique et atteignent un second détecteur (détecteur *BSE – Back-Scattered Electrons*). La probabilité pour les électrons primaires d'être rétrodiffusée dépend fortement du numéro atomique des constituants chimiques présents, ainsi le signal récupéré par le détecteur *BSE* permet d'imager la distribution spatiale des différents éléments qui constituent l'échantillon.

L'interaction inélastique des couches extérieures des électrons dans l'échantillon avec les électrons primaires et secondaires résulte en l'émission de rayonnements X dont l'énergie est fonction de la densité de l'échantillon et des éléments chimiques présents. En utilisant un détecteur EDX – *Energy Dispersive X-ray* –, capable d'analyser ces rayonnements X, il est possible de déterminer les éléments chimiques constituant l'échantillon ainsi que leur fraction massique. En pratique l'analyse EDX ne détecte pas les éléments dont le numéro atomique est < 4.

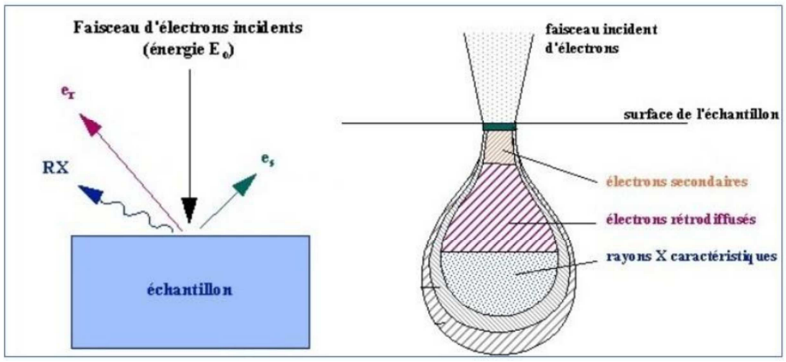


Figure II.2-7: Principe de mesure d'un microscope électronique à balayage

ii Appareillage

Les observations morphologiques ont été faites au centre CEMEF, Mines ParisTech sur un MEB FEG Supra 40 Zeiss et un MEB Philips XL30.

Le MEB Supra 40 permet la caractérisation de la phase aérogel de silice avec des images atteignant un grossissement jusqu'à (x 100 000). Il est équipé d'une colonne GEMINI qui permet de réduire fortement les aberrations et d'un détecteur d'électrons secondaires à l'intérieur de la colonne : détecteur *in lens*.

Le MEB Philips permet de caractériser les matériaux composites à plus grande échelle, jusqu'à (x 800) en grossissement, et de visualiser l'agencement entre la phase aérogel et la phase fibreuse. L'échantillon peut être maintenu sous une pression d'environ 500 Pa, le gaz environnant ionisé permet de neutraliser les charges électriques en surface de l'échantillon.

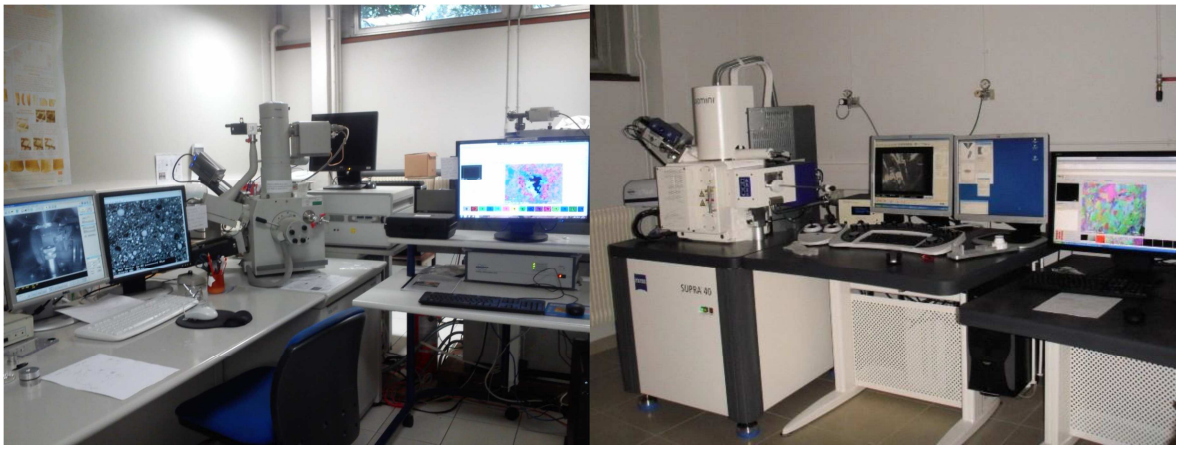


Figure II.2-8: MEB Philips XL30 (gauche), MEB FEG Supra 40 Zeiss (droite) au centre CEMEF, Mines ParisTech

iii Protocole de mesure

L'utilisation du MEB Philips ne nécessite pas de préparation particulière des échantillons. Quelques mm^3 d'échantillon sont soigneusement découpés en essayant de préserver au mieux la morphologie interne et sont placés dans la chambre de mesure. Les images du MEB Philips ont été prises avec une ouverture du diaphragme de 9 à 13 mm et une tension d'accélération de 15 kV.

Pour les mesures de la phase aérogel via le MEB Supra, il est nécessaire de métalliser correctement les échantillons avant le passage en MEB. En effet, comme l'aérogel de silice est un très mauvais conducteur électrique, des effets de charge s'accumulent sur l'échantillon et forment un champ électrique qui interfère avec les images. Pour empêcher la formation de ces artefacts, les échantillons sont métallisés par application d'une fine couche de platine (7 nm) en surface avec le métalliseur Q150 T ES (Quorum). Les images du MEB Supra ont été prises avec une ouverture de diaphragme de 3 à 6 mm, et une tension d'accélération de 3 kV. Les analyses EDX ont été effectuées avec une tension d'accélération de 10 kV.

II.2.2.e Tomographie à RX

i Principe

La tomographie par rayons X est une technique non destructive qui permet la reconstruction d'images en coupe d'un objet en trois dimensions. Son avantage sur l'observation MEB est considérable puisqu'elle permet visualiser la texture interne du matériau sans qu'il n'y ait besoin de le dégrader lors de découpes. L'image obtenue par tomographie reflète plus fidèlement la texture du matériau, et les dimensions caractéristiques du matériau peuvent être mesurées sans biais (par opposition aux images MEB 2 D où l'on a du mal à saisir les effets de profondeur).

Le principe de la tomographie consiste à reconstituer une image volumique de l'échantillon à partir de clichés radiographiques sur 360°.

L'échantillon est placé devant un faisceau de rayons X et absorbe une partie de ce rayonnement en fonction de son coefficient d'absorption. Les rayons X transmis sont convertis en lumière visible grâce à un scintillateur, puis sont enregistrés par une caméra. L'échantillon est ensuite tourné d'un pas angulaire et une nouvelle projection est réalisée. L'image finale est reconstruite mathématiquement à partir de tous les scans réalisés. Chaque voxel[3] de l'espace restitue ainsi une valeur de niveau de gris correspondant à l'absorption du matériau.

ii Appareillage

Les mesures en tomographie X ont été effectuées au laboratoire MATEIS, INSA LYON sur un tomographe GE Phoenix v|tome|x s. Le système dispose d'un tube RX de 160 kV avec une taille de foyer pouvant descendre jusqu'à 1 µm. Le détecteur Varian Paxscan a une surface active de 250 x 200 mm avec une matrice de 1920 x 1536 pixels (taille de pixel = 127 µm).

Figure II.2-9: Micro tomographe X GE Phoenix v|tome|x s pour l'analyse tomographique aux rayons X, centre MATEIS, INSA Lyon

iii Protocole de mesure

Les échantillons ont été découpés en cubes d'environ 100 mm³. Les faisceaux RX ont été réglés sur une tension de 80 kV et une intensité de 280 µA. 1000 scans ont été effectués pour reconstituer l'image 3 D de chaque échantillon avec une résolution spatiale de 2,5 µm. Les images sont ensuite traitées avec le logiciel ImageJ. Un filtre médian 3 D (3x3x3) est appliqué sur l'image volumique finale afin de retirer le bruit de mesure. Le filtre médian 3 D recalcule la valeur du niveau de gris de chaque voxel comme étant la médiane des valeurs du cube (3x3x3) ayant pour centre ce voxel. Ce filtre permet de supprimer le bruit de l'image tout en conservant les frontières. Un seuil de niveau de gris est ensuite choisi « à la main » pour séparer les phases en présence et binariser la valeur du niveau de gris (noir ou blanc). La fonction histogramme permet de calculer le nombre de voxels correspondant à chacune des phases sur l'ensemble de l'image volumique donnant par la suite leur fraction volumique. La

[3] Voxel : Pixel dans un espace à 3 dimensions

fonction *local thickness*[4] permet d'estimer la distribution de taille de macropores ainsi que la distribution de taille de diamètres de fibres. Cette fonction calcule le diamètre des plus grandes sphères qui « rentrent » à l'intérieur de l'objet en question. La fonction *Orientation J*[5] permet de caractériser l'orientation des fibres en se basant sur l'évaluation du tenseur de structure dans un voisinage des régions d'intérêt.

II.2.2.f Porosimétrie par sorption d'azote

i Principe

La porosimétrie par sorption d'azote est une technique qui examine l'interaction entre un gaz (l'azote dans le cas présent) et un solide adsorbant. Lorsque l'on fait varier la pression du gaz depuis le vide jusqu'à 1 bar – pression relative de 0 à 1 –, des informations sur la texture du matériau poreux sont déduites. Typiquement des informations sur la surface spécifique de l'échantillon, la taille des pores de 0,3 à 100 nm et la distribution de taille de pores. Le principe de la mesure consiste à tracer l'isotherme de sorption du matériau en interaction avec l'azote. À chaque pas de pression relative, le matériau poreux adsorbe une quantité bien spécifique d'azote. La quantité d'azote adsorbée (après équilibre) en fonction de la pression relative du gaz à température fixe est appelée branche d'adsorption. De manière similaire, la branche de désorption est mesurée en réduisant la pression relative du gaz de 1 à 0.
D'après la classification IUPAC [3], il existe 6 types d'isotherme de sorption et 4 sous types:

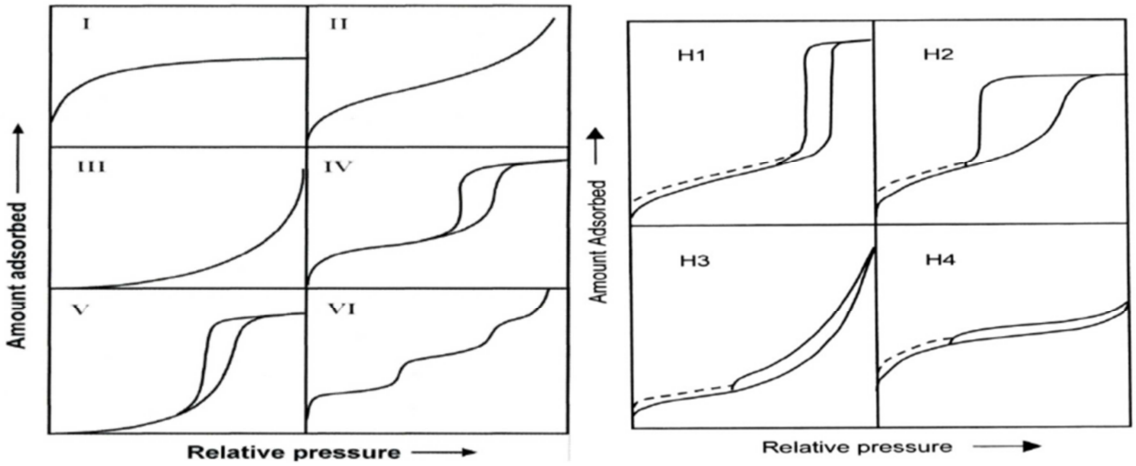


Figure II.2-10: Classification des isothermes de sorption d'après l'IUPAC

L'isotherme I correspond à la condensation du gaz dans un échantillon microporeux. Les isothermes II et III correspondent à l'adsorption multicouche d'une surface mouillante (II) ou non mouillante (III) pour des échantillons non poreux ou macroporeux. Les isothermes IV (mouillant) et V (non mouillant) sont signe d'une condensation capillaire dans un échantillon mésoporeux. L'isotherme VI correspond à l'adsorption d'un matériau très ordonné type

[4] http://www.optinav.info/LocalThicknessEd.pdf
[5] http://bigwww.epfl.ch/demo/orientation/

graphite. Les isothermes II et IV possèdent chacune 2 sous-catégories (respectivement H3, H4 et H1, H2) et permettent d'obtenir des informations sur la texture mésoporeuse en fonction de l'allure du cycle d'hystérésis. H1 indique une distribution étroite de mésopores uniformes, H2 indique un réseau de pores interconnectés de tailles différentes, H3 est attribuée à une condensation capillaire s'effectuant dans une structure non rigide et n'est pas caractéristique d'une mésoporosité définie et H4 correspond à des absorbants microporeux ayant des feuillets liés entre eux.

Toutes les informations de texture peuvent être déduites des isothermes de sorption. Une forte croissance à basse pression relative indique la présence de micropores, une forte pente dans les pressions relatives $< 0{,}3$ indique une forte surface spécifique. La présence d'un cycle hystérésis marqué indique que l'échantillon est mésoporeux et sa position indique la taille de ces mésopores. Le volume total de mésopores et de micropores peut être estimé à partir de la quantité de gaz adsorbée à une pression relative proche de 1.

ii Calcul du volume total de pores

Le volume total de pores – *méso + micro* – est accessible en utilisant la règle de Gurvich. En considérant qu'à une pression relative de 0,99, tous les pores sont remplis par le gaz sous forme condensée. Le volume poreux spécifique se calcule ainsi :

$$V_{pores,micro+meso} = V_{ads}.c \tag{II.10}$$

V_{ads} est le volume spécifique de gaz adsorbé en $cm^3(STP^6)/g$, et c est une constante qui dépend du gaz permettant de convertir le volume de gaz en volume de liquide. c égale à 0,001547 $cm^3/(\ cm^3$ (STP)) pour l'azote.

Pour les échantillons non macroporeux, le volume total de pores permet de calculer la densité apparente de l'aérogel suivant la formule :

$$\rho = \left(V_{pores,micro+meso} + \frac{1}{\rho_s}\right)^{-1} \tag{II.11}$$

avec ρ_s ($g \cdot cm^{-3}$) la densité du squelette solide de l'aérogel. Pour un aérogel de silice, ρ_s vaut 2-2,2 $g \cdot cm^{-3}$ [4]. Pour des aérogels de silice, on remarque que la masse volumique apparente calculée d'après (II.11) est souvent inférieure à celle calculée par des méthodes macroscopiques (type pycnomètre à poudre). Plusieurs facteurs peuvent expliquer ce phénomène :

- L'échantillon possède une fraction macroporeuse qui n'est pas accessible par le gaz (pore >100 nm).
- L'échantillon a été insuffisamment équilibré entre chaque point de mesure et n'a pas eu le temps de se relaxer [5]. Si le temps d'équilibre est uniquement gouverné par un phénomène de diffusion, alors la pression doit converger vers sa valeur de consigne de

[6] STP : Standard Temperature and Pressure

façon exponentielle. Dans le cas d'un temps d'équilibre trop court, la pression dans l'échantillon est différente de celle de la consigne, résultant en des mesures erronées.

Sous l'effet de la condensation capillaire des molécules d'azote dans les pores, l'aérogel se contracte et subit une déformation plastique. L'ampleur de cette contraction est corrélée au module élastique de l'aérogel. Pour un aérogel ayant un module de compression volumique de 2 MPa, la contraction volumique peut atteindre 50 %. Reichenaueur et Scherer [6] ont mis en évidence ce phénomène de contraction en mesurant le déplacement linéaire de l'échantillon au cours de la sorption à l'aide d'un capteur de type *Linear Variable Differential Transformer.* Ils proposent des modèles de correction de l'isotherme expérimentale pour obtenir l'isotherme 'vraie'. La variation macroscopique de volume $\frac{V}{V_0}$ est décrite théoriquement par la relation (II.12):

$$\frac{V}{V_0} = \exp\left(\frac{\sigma}{K_0}\right) \tag{II.12}$$

$$K_0 = E_0/3(1-2\nu) \tag{II.13}$$

$$\sigma = \ln\left(\frac{p}{p_0}\right)\frac{R_G T}{V_{L,mol}} \cdot \frac{V_{ads}}{V_{pore}} . \Pi \tag{II.14}$$

σ (MPa) est la contrainte exercée sur le squelette de l'aérogel, K_0 (MPa) le module de compression volumique de l'aérogel au repos calculé à partir du module de Young E_0 (MPa) et de son coefficient de poisson ν (0,15 pour les aérogels). $\frac{p}{p_0}$ est la pression relative, R_G la constante des gaz, T (K) la température, $V_{L,mol}$ le volume molaire de l'azote liquide condensé (34 $cm^3 \cdot mol^{-1}$), $\frac{V_{ads}}{V_{pore}}$ est le taux de remplissage relatif des pores, et Π la porosité.

La Figure II.2-11 montre l'influence du temps d'équilibre et de l'effet de contraction sur les isothermes de sorption d'un aérogel de silice.

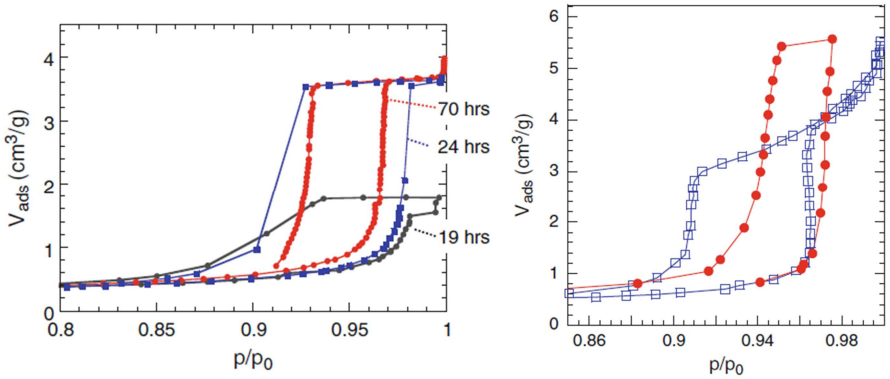


Figure II.2-11: (gauche) : Trois isothermes provenant du même échantillon d'aérogel de silice pour des temps d'équilibre différents. Les temps indiqués sur la figure correspondent à la durée totale de la mesure. (droite) : Correction de l'isotherme de sorption d'un aérogel de silice contracté d'après [6]. En bleu : l'isotherme expérimentale, en rouge : l'isotherme corrigée

iii Calcul de la surface spécifique

La méthode la plus courante pour calculer la surface spécifique d'un matériau poreux est la méthode BET[7] [7]. L'équation BET dans sa forme linéarisée relie la quantité de gaz adsorbée en fonction de la pression relative du gaz suivant l'équation :

$$\frac{p/p_0}{V_{ads}.(1-p/p_0)} = \frac{1}{V_{ml,BET}.C} + \frac{C-1}{V_{ml,BET}.C}.(p/p_0) \quad \text{(II.15)}$$

p/p_0 est la pression relative, V_{ads} est le volume adsorbé, $V_{ml,BET}$ est la capacité spécifique monocouche, $V_{ml,BET}$ est le volume adsorbable nécessaire pour recouvrir la surface du solide d'une couche monomoléculaire et C est une constante qui fournit des informations sur l'interaction entre la surface et le gaz.

En traçant la courbe de l'équation BET, on peut déterminer la surface spécifique BET :

$$S_{BET} = \frac{V_{ml,BET} S_g N_A}{V_{mol,STP}} \quad \text{(II.16)}$$

avec S_g l'aire de la molécule de gaz adsorbée (0,162 nm^2 pour l'azote) et $V_{mol,STP}$ le volume molaire (=22,414 cm^3 (STP/mol)).

Les résultats issus de l'équation BET sur l'isotherme de sorption dépendent fortement de la plage de pression relative utilisée. En général, pour un aérogel de silice, la plage de pression relative est 0,05 – 0,25. La référence [8] décrit les critères à remplir pour que l'équation BET soit valide dans la plage de pression relative choisie.

iv Calcul de la taille des pores et de la distribution poreuse

Une approche simple pour avoir une estimation du diamètre de pores moyen d_m de l'aérogel est de déterminer sa surface spécifique S_{BET} et son volume poreux spécifique V_p et d'appliquer la relation suivante :

$$d_m = 4V_p/S_{BET} \quad \text{(II.17)}$$

La détermination de la distribution de taille de pores se fait à l'aide de la méthode BJH[8] [9]; qui est basée sur les phénomènes de condensation capillaire dans les mésopores. D'après l'équation de Kelvin, le rayon r_M du ménisque formé par un liquide lors de sa condensation dans un pore est fonction de la pression relative :

$$r_M = 2\gamma.V_{L,mol}/(R_G T.\ln(p/p_0)) \quad \text{(II.18)}$$

avec γ et $V_{L,mol}$ la surface de tension et le volume molaire du liquide condensé (respectivement 0,00885 J · m^{-2} et 34 cm^3 · mol^{-1} pour l'azote).

[7] BET pour Brunauer, Emmet et Teller

[8] BJH pour Barrett, Joyner et Halenda

Avant le remplissage complet d'un pore, une couche d'adsorbant t_L est déjà présente. Dans le cas d'un pore sphérique ou cylindrique le diamètre se calcule selon :

$$d = r_M + t_L \tag{II.19}$$

En combinant le volume adsorbé sur un certain intervalle de pression relative avec le diamètre de pores correspondant, on obtient une distribution de taille de pores.

Historiquement, le calcul de la distribution de taille de pores est obtenu à partir de la branche de désorption pour des raisons thermodynamiques. Cependant, des études plus récentes ont montré que l'analyse de la branche d'adsorption était plus représentative de la texture poreuse réelle du matériau.

v Compression isostatique de l'aérogel lors de la mesure

L'effet de déformation plastique de l'aérogel lors de l'isotherme de sorption est beaucoup plus marqué sur la branche de désorption comme le montre la Figure II.2-12. L'analyse de la branche de sorption sera moins erronée que l'analyse de la branche de désorption.

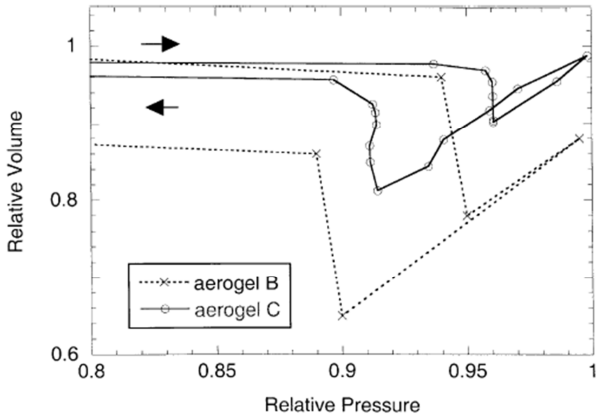


Figure II.2-12: Effet de contraction de l'aérogel pendant l'isotherme de sorption. Les modules de compression des aérogels B et C sont respectivement 3,4 MPa et 10,2 MPa [10]

Reichenauer et Scherer [10] ont proposé un modèle de correction de la distribution de taille de pores connaissant la variation volumique de l'échantillon au cours de l'isotherme de sorption.

$$D = D'.\frac{V_{ads,0}}{V_{ads}} = D'.(V_0 - V_s)/((V/V_0)V_0 - V_s) \tag{II.20}$$

avec D' le diamètre de pores déterminé par la méthode BJH sur la branche de désorption. V_{ads} le volume spécifique adsorbé par les pores de l'échantillon contracté, $V_{ads,0}$ est le volume spécifique adsorbé par les pores si l'échantillon n'était pas contracté. V_s est le volume spécifique de la phase solide $(1/\rho_s)$, V_0 le volume de l'échantillon au repos, et V/V_0 la variation de volume sous compression isostatique obtenue à partir de (II.12) ou par suivi expérimental de la longueur L de l'échantillon $V/V_0 = (1 + \Delta L/L_0)^3$.

vi Fermeture de l'hystérésis lors de la désorption – Tensile Strength Effect (TSE)-

Pour un fluide adsorbant donné, il existe une limite de pression en dessous de laquelle les ménisques ne peuvent plus exister dans un état stable, ce qui mène alors à l'évaporation spontanée du liquide condensé dans les pores et à la fermeture de la boucle d'hystérésis.
Dans ce cas, l'application du modèle BJH sur la branche de désorption donne des résultats très différents de ceux obtenus à partir de la branche d'adsorption.
L'analyse de la distribution poreuse sur la branche de désorption donne un artefact de mesure, caractérisé par un pic très étroit dans la région des pores < 15 nm [11]. Ce pic ne reflète pas les propriétés poreuses exactes du matériau, mais est plutôt déterminé par la nature du gaz adsorbé. La Figure II.2-13 illustre le *TSE* sur la distribution de taille de pores d'une zéolite, avec un pic artefact à 4 nm correspondant à une fermeture de l'hystérésis à une pression relative de 0,4. La comparaison des courbes issues de l'adsorption et de la désorption peut être utilisée comme un diagnostic du *TSE*. Il est clair que sur la figure 10 le pic étroit à 4 nm issu de la branche de désorption constitue un artefact de mesure, puisqu'aucun signe de pores à 4 nm n'est présent pour la courbe issue de la branche d'adsorption

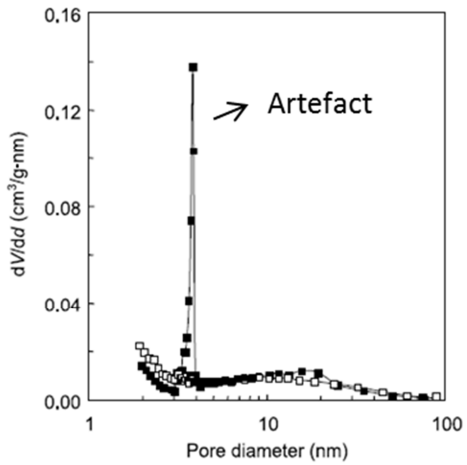


Figure II.2-13: Distribution de taille de pores d'une zéolite à partir de l'analyse de la branche de désorption (carré noir), et de la branche d'adsorption (carré blanc) [11]

Cet effet est décrit dans la littérature pour de nombreux autres matériaux : Vanadosilicate [12], aluminosilicate [13], titanosilicate [14], dioxyde de titane [15], oxyde de Zirconium[16], mais n'a pas été reporté pour l'aérogel de silice à ce jour.

vii Effet du réseau poreux

L'effet du réseau poreux est illustré en Figure II.2-14 lorsque des pores de petite taille gênent l'adsorption ou la désorption du gaz des pores de plus grande taille.

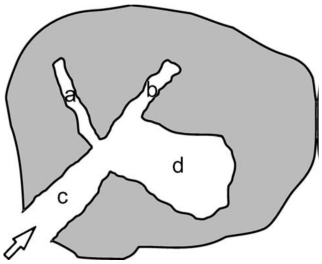


Figure II.2-14: Effet du réseau de pores sur la sorption/désorption

Lors de l'adsorption, les pores a et b se remplissent en premier, puis le pore c à une pression légèrement supérieure. Hors le pore c, rempli de liquide condensé gène l'adsorption du gaz par le pore d à plus haute pression. De manière analogue, la désorption du pore d, qui a lieu avant celle du pore c, va être bloquée par ce dernier car il est encore rempli. L'effet du réseau de pores est beaucoup plus marqué lors de la désorption, et conduit à des distributions de taille de pores sous-estimés, c'est pourquoi une fois de plus, on préfèrera l'analyse sur la branche d'adsorption. Il en résulte dans l'analyse BJH de subites variations de distribution de pores, due à la soudaine sorption/désorption des pores précédemment bloqués.

viii Appareillage

Les analyses par adsorption d'azote ont été faites avec un appareil ASAP 2020 (Micrometrics), au centre CEMEF, Mines ParisTech. L'appareillage est composé de deux systèmes de vide indépendants, l'un pour la préparation de l'échantillon et l'autre pour l'analyse, permettant de réaliser le séchage et l'analyse sans interruption. L'appareil dispose de deux ports de séchage indépendants, d'un dewar de référence et d'un dewar d'analyse.

Figure II.2-15: Appareil ASAP 2020 pour l'analyse texturale par sorption d'azote, centre CEMEF, Mines ParisTech

ix Protocole de mesure

Les masses de l'échantillon et du tube sont mesurées avec une précision de 0,1 mg. Pour les échantillons à base d'aérogel de silice, une quantité d'environ 100 mg d'échantillon doit être utilisée pour les mesures. Les échantillons sont ensuite séchés à 100 °C pendant 10 h avec une rampe de consigne de 5 $°C \cdot min^{-1}$, afin d'éliminer toutes les impuretés de l'échantillon. Pour cela, on place les tubes sur le circuit de dégazage en les fixant avec un écrou de serrage et en

plaçant un manchon chauffant à la base des tubes. Pour la phase d'analyse, trente points sont mesurés entre les pressions relatives (p/p°) 0,05 et 0,3 pour le calcul de la surface spécifique, un point à p/p° = 0,99 pour le calcul du volume poreux spécifique et 80-100 points pour le cycle de sorption complet et la mesure de la distribution de taille de pores. Sauf mention contraire, le temps d'équilibre est de 5 secondes.
Une fois le dégazage terminé, on remesure la masse à 0,1 mg près que l'on réintègre dans le logiciel. On fixe ensuite le tube contenant l'échantillon dans le port d'analyse après lui avoir mis la jaquette isothermique et on lance l'analyse. Entre chaque étape d'analyse, il est important de remplir le dewar d'azote liquide à niveau si celui-ci est trop bas pour obtenir une bonne répétabilitée des mesures.

II.2.3. Caractérisation thermique

La caractérisation thermique est l'élément central de la caractérisation du *blanket* aérogel. En particulier la conductivité thermique qui est directement reliée à l'efficacité thermique attendue du matériau, voire du bâtiment.
En toute rigueur, le terme conductivité thermique ne s'applique que pour le cas d'un transfert thermique par conduction pure. En général, les isolants thermiques sont pour la plupart des matériaux poreux légers et l'hypothèse de conduction pure ne peut être systématiquement retenue car ils sont le siège de transferts de chaleur combinés par conduction et rayonnement. On observe expérimentalement plusieurs cas de figure concernant la mesure de conductivité thermique des isolants :

- Le transfert thermique a lieu uniquement par conduction et on peut définir une conductivité thermique intrinsèque au matériau.
- Le transfert thermique à lieu à la fois par conduction et par rayonnement. La conductivité thermique déduite peut dépendre des conditions de mesure (épaisseur de l'isolant, différence de température, émissivité des surfaces). La conductivité thermique n'est alors pas une propriété intrinsèque du matériau, on la nomme conductivité thermique effective ou facteur de transfert thermique.

On distingue classiquement deux types de méthodes pour la mesure de conductivité thermique d'un isolant : les méthodes de mesure en régime stationnaire et les méthodes en régime transitoire.
En régime stationnaire, on peut déterminer dans tous les cas le facteur de transfert thermique de l'isolant, quels que soient les mécanismes de transfert de chaleur impliqués. Les méthodes les plus courantes sont celles de la plaque chaude gardée et la méthode fluxmétrique. Le principe de l'appareillage est de reproduire le transfert de chaleur à travers une plaque infinie limitée par deux plans parallèles isothermes. Ces méthodes en régime permanent disposent des meilleures précisions de mesures (jusqu'à 1 % pour la plaque chaude gardée) mais font face à de nombreuses sources d'erreurs et approximations :

- Les échantillons étant de dimensions nécessairement finies, on doit prendre en compte les transferts thermiques aux bords des plaques, qui modifient localement le champ de température par rapport au cas idéal.
- La surface de contact entre l'échantillon et les plaques peut présenter des irrégularités, ce qui introduit des résistances thermiques de contact supplémentaires.
- Les échantillons épais disposent d'une surface latérale importante provoquant des pertes thermiques latérales non négligeables.
- La planéité et le parallélisme des surfaces de l'échantillon jouent aussi un rôle dans la détermination de la conductivité thermique.

Les méthodes en régime transitoire s'appliquent uniquement pour des matériaux opaques et secs. Les méthodes les plus courantes sont la méthode du fil chaud et la méthode flash. Le principe est d'impulser une perturbation thermique dans l'échantillon et de mesurer la réponse thermique du matériau en fonction du temps. À partir du traitement mathématique du signal, l'identification de la conductivité thermique est réalisée. Les avantages de telles méthodes sont le temps de mesure très court (moins de 10 minutes). Cependant, la précision de mesure de ces méthodes est généralement moins bonne que pour les méthodes en régime permanent et il semble difficile d'obtenir une précision meilleure que 10 %. Parmi les sources d'erreur importantes, on retrouve :

- Le contact imparfait entre le fil chaud et l'échantillon
- Les méthodes s'appliquent mal pour des matériaux anisotropes (isolants fibreux en particulier)
- La méthode flash ne tient pas compte des pertes thermiques par rayonnement et convection naturelle à la surface libre du matériau

De manière générale, la métrologie thermique concernant les matériaux isolants est délicate en raison de leur faible densité, leur comportement parfois semi-transparent ainsi que leur anisotropie. Avec l'arrivée des super-isolants, cela se complexifie davantage, car les flux thermiques mesurés à travers les échantillons sont de plus en plus faibles, ce qui entache la précision de mesure globale. De ce fait, les appareils actuels garantissent généralement les résultats de mesures de conductivité thermique au-dessus de 0,005-0,015 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Cette limite basse est du même ordre de grandeur que la conductivité thermique de nos matériaux aérogels.

Dans le cadre de la thèse, la caractérisation de la conductivité thermique est faite par méthode fluxmétrique en régime permanent. La méthode transitoire type « fil chaud » a été essayé mais n'est pas adaptée pour nos types de matériau. En effet, sa précision de mesure devient très mauvaise lorsque l'on tente de mesurer des conductivités thermiques inférieures à 0,020 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, et il devient impossible d'assurer la répétabilitée des mesures.

II.2.3.a Détermination de la conductivité thermique par méthode fluxmétrique

i Principe

Le principe de la méthode fluxmétrique est basé sur la loi de Fourier unidimensionnel :

$$q = -\lambda\left(\frac{dT}{dx}\right) \tag{II.21}$$

avec q la densité de flux thermique ($W \cdot m^{-2}$) traversant l'échantillon, λ sa conductivité thermique effective ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$), $\frac{dT}{dx}$ le gradient de température ($K \cdot m^{-1}$) entre les surfaces isothermes de l'échantillon.

Si un échantillon est placé entre deux plaques isothermes maintenues à différentes températures, et qu'un champ de température uniforme et unidimensionnel est stabilisé, alors la conductivité thermique effective de l'échantillon peut être déterminée d'après (II.21).
L'équilibre thermique est atteint lorsque le nombre de Fourier $Fo = at/(d/2)^2 \gg 1$, où a est la diffusivité thermique de l'échantillon (2 -7 10^{-7} $m^2 \cdot s^{-1}$ pour les isolants), t le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre thermique et d l'épaisseur de l'échantillon.

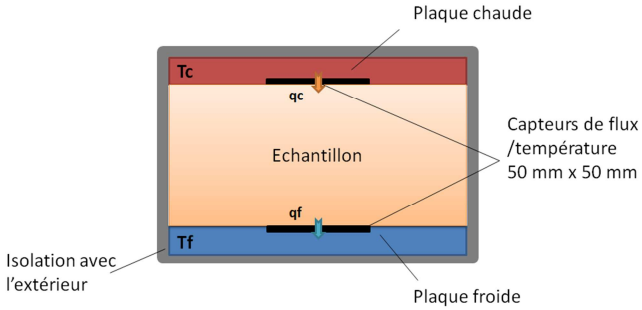


Figure II.2-16: Principe de mesure de conductivité thermique par méthode fluxmétrique. Le flux thermique q utilisé dans l'équation (II.21) est la moyenne de qc et qf.

ii Appareillage

Les mesures de conductivité thermique ont été effectuées au laboratoire PERSEE, Mines ParisTech, sur un FOX 150 (LaserComp) pour des échantillons de 0 à 25 mm d'épaisseur sur une plage de température de 1 °C à 40 °C. Le FOX 150 est composé de deux plaques entre lesquelles s'insère l'échantillon, le tout calorifugé. La plaque supérieure est immobile alors que la plaque inférieure peut monter et descendre grâce à 4 moteurs indépendants. La position de chaque coin de la plaque inférieure est mesurée avec une précision de 0,025 mm.
Chaque plaque est équipée d'un transducteur de flux thermique (5 cm x 5 cm) d'épaisseur totale 1 mm, empêchant ainsi toute distorsion du flux thermique, et ayant une précision de 0,6 µV. Au centre de chaque transducteur est scellé un thermocouple type E d'épaisseur 0,1 mm permettant de mesurer la température de surface des échantillons avec une précision de 0,01 °C. Le logiciel Wintherm est utilisé pour contrôler le FOX 150 et enregistrer les résultats.

Le FOX 150 peut être également couplé avec un système de mise sous vide. Le FOX est alors placé sous un couvercle étanche, et l'air est extrait grâce à une turbopompe. Le réglage de la pression interne est fait à l'aide d'une valve micrométrique.

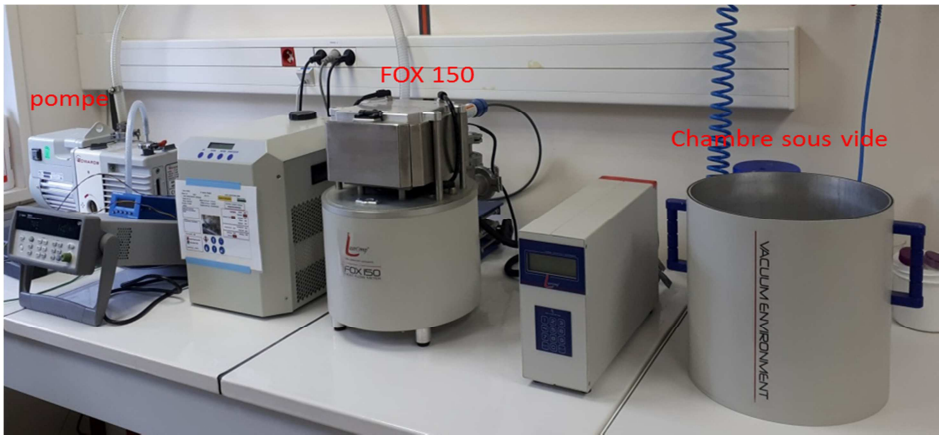


Figure II.2-17 : Appareil FOX 150 pour la mesure de conductivité thermique, centre PERSEE, Mines ParisTech. L'appareillage dispose également d'une option de mesure sous vide grâce à la pompe et la chambre sous vide que l'on voit sur la figure.

iii Protocole de mesure

Avant de déterminer la conductivité thermique d'un échantillon inconnu, le FOX est calibré à l'aide d'un isolant EPS de conductivité thermique connue. Les mesures sont ensuite effectuées suivant la norme EN12667 [17].

Cette norme recommande un certain nombre de limitations concernant les échantillons à mesurer :

- La température de la plaque froide doit être 5 °C supérieure à la température de point de rosée pour éviter tout risque de condensation sur la plaque.
- L'écart de température entre les deux plaques doit être supérieur à 10 °C pour limiter les incertitudes sur le flux thermique.
- Les côtés de l'échantillon doivent avoir une largeur au moins 1,5 fois plus grande que celle du capteur de flux thermique pour éviter les effets de bord.
- Les côtés de l'échantillon doivent avoir une largeur au moins 8 fois plus grande que son épaisseur pour avoir un champ de température uniforme.

Les échantillons sont tout d'abord conditionnés en enceinte climatique à une température de 23 °C et 50 % d'humidité relative. Une fois l'échantillon placé dans la chambre du FOX, les températures de plaque chaude et froide sont respectivement choisies à 25 °C et 15 °C. Les mesures sont effectuées en mode *AutodX* pour les échantillons non compressibles, et en mode manuel pour les échantillons compressibles.

Les critères d'équilibre thermique choisis sont les suivants :

- Nombre de mesures par cycle : 256
- Écart de température moyen par rapport à la consigne sur un cycle de mesure : < 0,2 °C.

- Écart de flux thermique moyen entre deux cycles de mesure consécutifs : < 3 %
- Nombre de cycles consécutifs respectant le critère du flux thermique : 4

Pour un échantillon de *blanket* aérogel d'épaisseur 8 à 25 mm, les mesures durent approximativement 30 à 60 minutes, et la conductivité thermique est donnée avec une précision d'environ 1 %.

iv Extension aux mesures sous vide

Pour les mesures sous vide, les paramètres de mesure sont les mêmes qu'en atmosphère ambiante. Le calibrage du FOX doit être effectué avant de mettre le couvercle étanche. Pour permettre de descendre à des pressions de 20 µbar, le joint élastique à la base du couvercle doit être correctement positionné. De plus, l'utilisation d'une graisse à la jointure couvercle/base du FOX permet de renforcer l'étanchéité. Une fois l'échantillon en place, la turbopompe est activée jusqu'à obtenir une pression inférieure à la pression minimale de mesure souhaitée. Les mesures sont ensuite effectuées aux pressions voulues, grâce à la valve micrométrique qui régule la pression de la chambre. Avant d'effectuer la mesure à l'aide du FOX, il est conseillé d'attendre que la pression atteigne un équilibre stable dans la chambre.

v Extension aux mesures d'échantillons de petite taille (Microfluxmètre)

Certains échantillons ne respectent pas les critères de taille mentionnés par la norme EN 12667. En particulier, lorsque leur taille est plus petite que le capteur du FOX, il n'est pas possible de déterminer leur conductivité thermique avec celui-ci. Pour répondre à cette limitation, le centre PERSEE (Mines ParisTech) possède un dispositif basé sur l'implémentation de mini capteurs de flux thermique et de température, adapté aux appareillages FOX. Ces capteurs mesurent 1 cm de diamètre et sont encastrés dans des plaques en aluminium. L'échantillon est placé au centre des plaques, entouré d'une garde isolante qui limite les effets de convection entre les plaques en aluminium. Le tout est inséré dans le FOX 150 qui impose la consigne en température des deux plaques en aluminium. Les données de température et de flux thermique sont enregistrées et affichées en direct sur le logiciel *Agilent*. Le choix de l'équilibre est propre à l'utilisateur en se basant sur les diagrammes de température et de flux thermique. Une fois le cycle de mesure terminé, le calcul de la conductivité thermique est effectué sur les 50 dernières mesures en utilisant la loi de Fourier.

La mesure de conductivité thermique obtenue est très sensible à la précision de mesure de l'épaisseur de l'échantillon. Celle-ci peut être estimée à ± 0,2 mm ce qui correspond à une erreur de 10 % sur la conductivité thermique.

Figure II.2-18: Dispositif microfluxmètre pour la mesure de conductivité thermique de petits échantillons, centre PERSEE, Mines ParisTech. L'échantillon est au centre des plaques en aluminium entouré par une garde isolante, puis le tout en inséré dans le FOX 150.

vi Mesure de conductivité thermique d'un matériau humide

Pour les mesures de conductivité thermique en ambiance humide, le laboratoire ne dispose pas du matériel nécessaire afin d'effectuer des essais *in situ*. Le protocole consiste alors à conditionner les échantillons en enceinte climatique régulée à l'humidité relative souhaitée jusqu'à obtention de l'équilibre hydrique. L'échantillon est ensuite ensaché à l'aide d'un film plastique imperméable à la vapeur d'eau et à l'eau.

La difficulté de la mesure vient du fait que l'application d'un gradient de température modifie la répartition de la teneur en eau dans le matériau. Le flux thermique au sein de l'échantillon a alors l'allure de la Figure II.2-19, avec une première phase d'équilibre A, une phase de transition B et une deuxième phase d'équilibre C. La position de la phase de transition B dépend essentiellement de la perméabilité du matériau.

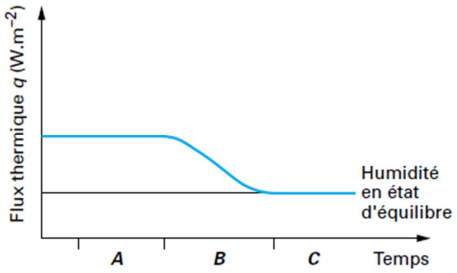


Figure II.2-19: Variation du flux thermique en fonction du temps lors de la mesure de conductivité thermique d'un matériau humide

Durant la phase A, le flux thermique est constant et correspond à une évaporation continue sur la plaque chaude du fluxmètre et à une redistribution homogène de la teneur en eau dans le matériau. Après la phase de transition, la phase C correspond à un équilibre de teneur en eau dans le matériau, mais avec une distribution non uniforme. On voit qu'en fonction du temps de mesure du fluxmètre et de la perméabilité du matériau, le flux mesuré et donc la conductivité thermique varie. Cet effet est responsable de la grande dispersion des valeurs de conductivité

thermique que l'on trouve dans la littérature pour un même matériau humide. La Figure II.2-20 montre le rapport entre conductivité humide λ_H^* et conductivité sèche λ_{sec} en fonction de la teneur en eau volumique pour un isolant de vermiculite et une laine de verre.

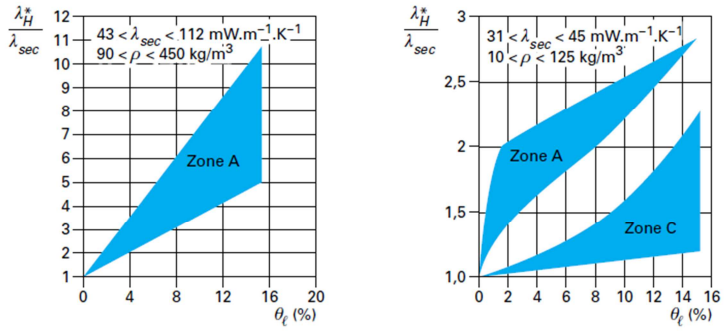


Figure II.2-20: Dispersion des valeurs de $\lambda_H^*/\lambda_{sec}$ en fonction de la teneur en eau volumique pour une vermiculite (gauche) et une laine de verre (droite)

II.2.3.b Détermination de la chaleur spécifique par calorimétrie différentielle à balayage

i Principe

La calorimétrie différentielle à balayage (ou de façon courante *DSC* pour *Differential Scanning Calorimetry*) se rapporte à l'étude de la température d'un échantillon et de ses échanges thermiques avec le milieu extérieur. Son principe est de faire varier de façon programmée la température d'une capsule contenant l'échantillon à étudier. Une seconde capsule contient un corps de référence inerte thermiquement. En mesurant la différence de flux thermique entre l'échantillon et la référence, le DSC peut mesurer la quantité de chaleur absorbée ou libérée par l'échantillon sur la plage de température étudiée. Le DSC s'applique dans de nombreux domaines, dont la détermination de la capacité thermique massique isobare c_p (J · g^{-1} · K^{-1}) d'un échantillon. En effet, pour un échantillon de masse m (g), on a :

$$c_p = \frac{1}{m}\left(\frac{\partial H}{\partial T}\right)_p \qquad \text{(II.22)}$$

avec $\left(\frac{\partial H}{\partial T}\right)_p$ (J · K^{-1}) la variation de l'enthalpie du matériau avec la température pour une transformation isobare. Lors d'un balayage en température à vitesse constante β(K · min^{-1}) et à pression constante, le flux thermique ϕ (W) entre l'échantillon et l'extérieur s'écrit :

$$\phi = \frac{dH}{dt} = mc_p\beta \qquad \text{(II.23)}$$

En pratique, les appareillages ne peuvent pas mesurer directement ce flux, mais enregistrent la différence entre les flux respectifs de la plateforme échantillon avec l'extérieur ϕ_{ech} et la plateforme référence avec l'extérieur ϕ_{ref}. Chacun des deux flux est mesuré par rapport à une ligne de base inconnue ϕ_0. Afin d'isoler le flux concernant uniquement l'échantillon, il faut se référer à une ligne de base connue ϕ_{vide}, obtenue à partir du signal enregistré en utilisant les

capsules vides dans les mêmes conditions d'analyse. Le flux propre à l'échantillon s'obtient donc de la façon suivante :

$$\begin{gathered}\phi = \phi_{ech} - \phi_{vide} = \\ \left[\left(\phi_{ech} - \phi_{0,ech}\right) - \left(\phi_{ref} - \phi_{0,ref}\right)\right] \\ -\left[\left(\phi_{vide} - \phi_{0,ech}\right) - \left(\phi_{ref} - \phi_{0,ref}\right)\right]\end{gathered} \tag{II.24}$$

L'expérience est préalablement calibrée à l'aide d'un saphir dont la capacité massique est connue. La capacité thermique massique isobare c_p de l'échantillon est ainsi calculée :

$$c_p = K\frac{\phi}{mv} \tag{II.25}$$

avec K le facteur de calibration.

ii Appareillage

Les mesures de capacité thermique massique ont été effectuées avec un DSC 8000 (PerkinElmer) au centre CEMEF (Mines ParisTech).

Figure II.2-21 : DSC 8000 pour la mesure de chaleur spécifique au centre CEMEF (Mines ParisTech)

iii Protocole de mesure

Les analyses DSC ont été faites dans le cadre de la norme EN 11357 [18]. La plage de température considérée est -10 °C - +40 °C. Le cycle de température est défini comme ci-dessous :

- Une isotherme à -10 °C
- Une rampe de -10 °C à 40 °C avec une vitesse de balayage de la température de $10°C \cdot min^{-1}$
- Une isotherme à 40 °C

Chaque mesurage consiste en trois cycles réalisés à la même vitesse de balayage.
Premièrement, on enregistre la courbe DSC à blanc (capsule échantillon et capsule référence vide) afin de générer la ligne de base de l'appareil. Ensuite, un cycle d'étalonnage est effectué à l'aide d'un saphir ayant une capacité thermique massique bien défini dans la plage de

température. Les capsules de saphir et à vide sont soumises au même cycle de température que celui de l'échantillon et permettent de calculer le facteur de calibration.
Enfin, la courbe DSC de l'échantillon est enregistrée après avoir mesuré sa masse à 0,01 mg près.

II.2.4. Caractérisation hydrique

De façon courante, on parle de caractérisation hydrique pour l'étude du comportement d'un matériau vis-à-vis de l'humidité ou de l'eau. Plus rigoureusement, on associera le terme « hydrique » à l'eau et le terme « hygrique » à l'humidité La caractérisation hygrique est primordiale puisque l'humidité est la cause première de dégradation des isolants thermiques. La dégradation peut être structurelle, réduisant directement la durée de vie de l'isolant, ou thermique, réduisant l'efficacité énergétique de l'isolant.

II.2.4.a Mesure de la teneur en eau

i Principe

En présence d'humidité, les échantillons poreux adsorbent physiquement les molécules d'eau à la surface totale offerte par les pores. Ce phénomène est dû aux forces intermoléculaires de Vander Walls agissant sur les molécules de vapeur. Il existe plusieurs étapes distinctes du phénomène d'adsorption :

- Pour une humidité relative < 20 %, l'adsorption est monomoléculaire, une seule couche de molécule d'eau est présente à la surface des pores
- À partir de 20 % d'humidité relative, l'adsorption est plurimoléculaire, plusieurs couches de molécules d'eau viennent se fixer sur la première.
- À partir de 50 % d'humidité relative, le phénomène de condensation capillaire peut apparaître. Les couches plurimoléculaires qui s'accumulent dans les pores peuvent se rejoindre et former un pont liquide alors même que l'humidité relative est inférieure à 100 %. Ce phénomène apparaît plus tôt lorsque la taille des pores est petite.

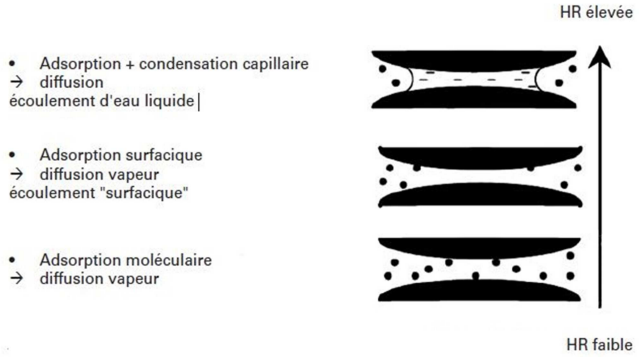


Figure II.2-22 : Mécanisme de fixation des molécules d'eau dans un matériau poreux

Les mesures de teneur en eau massique quantifient la masse d'eau adsorbée par un échantillon en fonction de l'humidité relative environnante. Elles consistent à placer l'échantillon dans des

environnements d'humidité relative croissante à température constante. La teneur en eau massique u est calculée pour chaque environnement après que l'échantillon ait atteint son équilibre hydrique :

$$u = (m - m_0)/m_0 \tag{II.26}$$

m est la masse de l'échantillon sous environnement humide quelconque et m_0 la masse de l'échantillon à l'état sec. Le tracé de la teneur en eau massique en fonction de l'humidité relative croissante constitue la courbe de sorption du matériau. De manière analogue, la courbe de désorption est tracée pour des humidités relatives décroissantes, en partant du dernier point de mesure de la courbe de sorption. L'isotherme complète de sorption caractérise la capacité du matériau à stocker l'eau. Elle présente trois régions d'intérêt (Figure II.2-23) :

- Une région A dite hygroscopique qui s'étend jusqu'à 95 % d'humidité relative. Elle prend en compte toutes les teneurs en eau résultant de la sorption d'humidité et de la condensation capillaire.
- Une région B de saturation capillaire qui s'étend jusqu'à la saturation libre.
- Une région C de « super saturation » qui s'étend jusqu'à la saturation maximale du matériau. Cette région ne peut pas être atteinte par le phénomène de succion, mais seulement en laboratoire sous l'application de pressions. En raison des trous d'air emprisonnés dans le matériau, la saturation maximale est supérieure à la saturation libre.

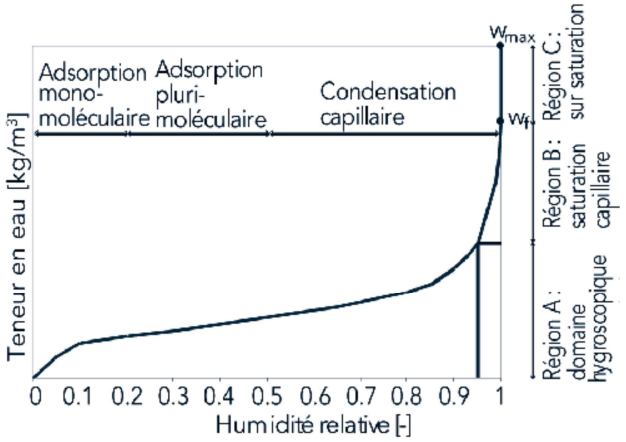


Figure II.2-23: Isotherme de sorption d'eau pour un matériau poreux fictif

ii Appareillage

L'appareillage est constitué d'une chambre climatique avec une précision de 3 % pour l'humidité relative et 1 °C pour la température, de coupelles de pesée n'absorbant pas l'eau et d'une balance capable de peser la masse de l'échantillon avec 0,01 % de précision.

Figure II.2-24: Enceinte climatique Binder pour les mesures de reprise hydrique, centre PERSEE, Mines ParisTech

iii Protocole de mesure

Les mesures de reprise hydrique ont été faites selon la norme EN ISO 12571 [19].
Les échantillons sont séchés à 70 °C et 10 % d'humidité relative. On considère que la masse sèche est atteinte lorsque la masse de l'échantillon ne varie pas de plus de 0,1 % en trois jours. En pratique, il a été observé que la masse sèche était atteinte au bout de 24 h pour les échantillons étudiés.
Au moins 4 ambiances d'humidité sont choisies pour tracer la courbe de sorption, entre 10 % et 98 % d'humidité relative, à une température de 23 °C. Il en va de même pour la courbe de désorption. À chaque ambiance d'humidité, l'échantillon est sorti de l'enceinte climatique et est pesé sur la balance. N'ayant pas de dispositif permettant de peser directement les échantillons dans l'enceinte climatique, l'expérimentateur avisé devra maintenir les conditions de la pièce ambiante aussi proche que possible que celle de l'enceinte climatique, tout en minimisant le temps pendant lequel l'échantillon est hors de l'enceinte.

II.2.4.b Mesure d'angle de contact avec une goutte d'eau

i Principe

La mesure de l'angle de contact entre une goutte d'eau et le matériau permet d'estimer le degré d'hydrophobicité de surface du matériau. Un goniomètre est généralement utilisé pour mesurer l'angle de contact, en utilisant un système de caméra haute résolution et un logiciel de traitement d'image. La mesure consiste à déposer une goutte d'eau à la surface de l'échantillon à l'aide d'une aiguille hypodermique et de photographier la zone de contact entre la goutte d'eau et la surface. Les surfaces hydrophiles attirent la goutte d'eau et auront un angle de contact proche de 0 °. Une surface est considérée comme hydrophobe à partir d'un angle de contact supérieur à 90 °. Elle devient super-hydrophobe à partir de 150 °, lorsqu'elle ne montre aucun signe de mouillage.

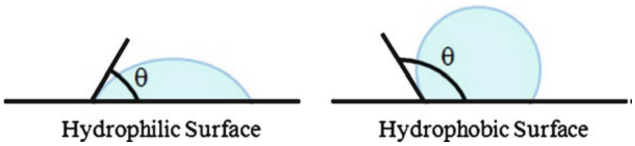


Figure II.2-25: Angle de contact d'une goutte d'eau avec une surface hydrophile et une surface hydrophobe

ii Appareillage

Les mesures sont réalisées avec un goniomètre KRUSS DSA 10 au centre CEMEF, Mines ParisTech.

Figure II.2-26: Goniomètre KRUSS DSA 10 au centre CEMEF, Mines ParisTech

iii Protocole de mesure

Les mesures ont été faites suivant la norme EN 828 [20]. Les échantillons sont préalablement conditionnés en enceinte climatique (T = 23 °C, HR = 50 %). Cinq gouttes d'eau d'environ 5 µL sont déposées à la surface de l'échantillon à l'aide d'une aiguille doseuse. L'angle de contact est mesuré à l'aide du goniomètre avec une incertitude maximale de 0,5 °.

II.2.4.c Mesure des propriétés de transfert d'humidité et d'eau

Le transport d'humidité dans les matériaux poreux résulte du mouvement de chacune des phases présentes (gazeuse et liquide). Le transfert de vapeur est généralement caractérisé par le coefficient de résistance à la diffusion de vapeur d'eau μ, et le transfert liquide par le coefficient d'absorption liquide A ($kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-0.5}$).

Transfert de vapeur d'eau

i Principe

L'échantillon d'essai est scellé sur les parois, coté ouvert, d'un récipient d'essai contenant une solution saline saturée ou un déshydratant. L'ensemble est ensuite placé dans une ambiance d'essai dont la température et l'humidité relative sont régulées. La différence de pressions partielles de vapeur d'eau entre le dispositif et l'ambiance d'essai génère un flux de vapeur d'eau à travers l'échantillon. Des pesées périodiques du dispositif d'essai sont effectuées pour

déterminer le coefficient de transmission de vapeur d'eau g ($mg \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$) lorsque le régime permanent est établi :

$$g = \frac{\Delta m}{A.\Delta t} \quad \text{(II.27)}$$

Δm est la variation de masse du dispositif, Δt le temps entre deux pesées successives et A est la surface exposée de l'échantillon. La valeur finale de g est obtenue lorsqu'elle ne varie pas de plus de 5 % lors des cinq dernières mesures. À partir de la connaissance de ce coefficient, on peut calculer de nombreux paramètres caractérisant le transfert de vapeur d'eau : la perméance à la vapeur d'eau W ($mg \cdot m^{-2} \cdot h^{-1} \cdot Pa^{-1}$), la résistance à la vapeur d'eau Z ($m^2 \cdot h \cdot Pa \cdot mg^{-1}$), la perméabilité à la vapeur d'eau δ ($mg \cdot m^{-1} \cdot h^{-1} \cdot Pa^{-1}$), le coefficient de résistance à la diffusion de vapeur d'eau μ et l'épaisseur de couche d'air équivalente s_d (m).

$$W = \frac{g}{\Delta P} \quad \text{(II.28)}$$

$$Z = 1/W \quad \text{(II.29)}$$

$$\delta = W.d \quad \text{(II.30)}$$

$$\mu = \delta_{air}/\delta \quad \text{(II.31)}$$

$$s_d = \mu.d \quad \text{(II.32)}$$

avec ΔP (Pa) la différence de pression de vapeur d'eau qui dépend de l'ensemble des conditions d'essai (Tableau II.2-3), d (m) l'épaisseur de l'échantillon, δ_{air} ($mg \cdot m^{-1} \cdot h^{-1} \cdot Pa^{-1}$) la perméabilité à la vapeur d'eau de l'air qui vaut :

$$\delta_{air} = \frac{0{,}083}{R_D T}.\frac{p_0}{p}.\left(\frac{T}{273}\right)^{1{,}81} \quad \text{(II.33)}$$

avec T (K) la température et p (hPa) la pression atmosphérique moyenne pendant l'essai, p_0 la pression atmosphérique normale : 101,25 hPa, R_D la constante de gaz de la vapeur d'eau : 462.10^{-8} $Nm \cdot mg^{-1} \cdot K^{-1}$.

Conditions d'essai en humidité relative (%)		**Différence de pression de vapeur d'eau**
État sec	**État humide**	
0	50	1400 Pa
0	85	2390 Pa
50	95	1210 Pa

Tableau II.2-3: Valeur de la différence de pression de vapeur d'eau selon les conditions d'essais pour une température de 23 °C.

ii Appareillage

Le dispositif d'essai est constitué d'une enceinte climatique de précision 1 °C pour la température et 3 % pour l'humidité, d'une balance de précision 1 mg, et d'un récipient d'essai conçu sur-mesure. Ce dernier permet de caractériser des échantillons carrés de taille 150 mm x 150 mm et d'épaisseur 5 à 30 mm. Il dispose d'un gabarit permettant de dupliquer la surface

exposée de l'échantillon. Le récipient est résistant à la corrosion des solutions salines et imperméable à l'eau et à la vapeur d'eau.

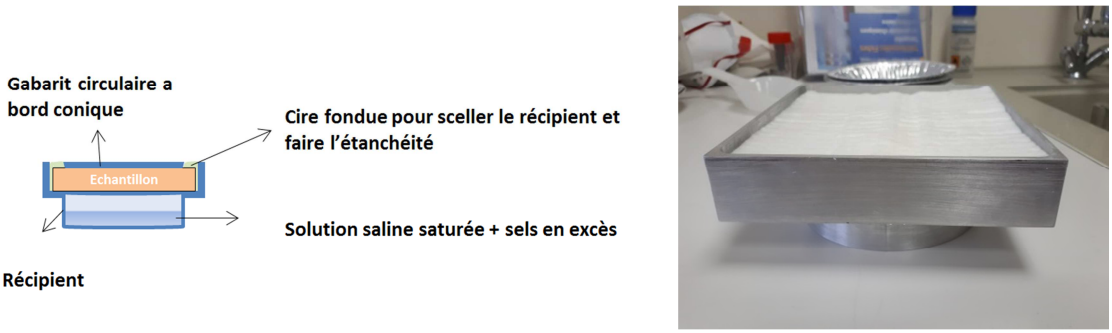


Figure II.2-27 : Dispositif d'essai pour la mesure des propriétés de transmission de vapeur d'eau

iii Protocole de mesure

Les mesures des propriétés de transmission de vapeur d'eau ont été faites suivant la norme EN 12086 [21]. Pour les mesures en conditions humides, on utilise une solution saline saturée de K_2SO_4 (20 g dissouts dans 150 mL d'eau distillée). La solution saline stabilise l'humidité relative dans le récipient à 98 %. Pour les mesures en conditions sèches, du gel de silice est disposé au fond du récipient, maintenant l'humidité relative à 1 %. L'échantillon est ensuite scellé dans le récipient avec de la paraffine, puis l'ensemble est placé en enceinte climatique régulée à 23 °C et 50 % d'humidité relative. Le dispositif d'essai est conditionné 24 h dans l'enceinte climatique, puis est pesé à intervalles réguliers de 24 h.

Transfert d'eau liquide

i Principe

L'échantillon est séché jusqu'à ce que sa masse soit constante, il est ensuite immergé dans 3 mm d'eau par une de ses faces et l'augmentation de masse est mesurée en fonction du temps. Le coefficient d'absorption liquide A ($kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-0.5}$) est calculé comme ci-dessous :

$$A = \frac{\Delta m}{S\sqrt{t}} \tag{II.34}$$

avec Δm (kg) la variation de masse entre deux pesées successives, S (m^2) la surface immergée de l'échantillon et t (s) le temps pour lequel la pesée est effectuée. Au moins 4 pesées doivent être effectuées, et le coefficient de corrélation entre Δm et $\sqrt{t}$ doit être supérieur à 0,95 pour obtenir une valeur fiable de A.

ii Appareillage

Le dispositif d'essai contient une chambre climatique dans laquelle a lieu l'essai, une balance de précision 0,01 mg et un chronomètre.

iii Protocole de mesure

Les échantillons sont maintenus immergés dans 3 mm ± 1 mm d'eau et sont conditionnés dans une enceinte climatique à 23 °C et 50 % d'humidité relative. Les échantillons sont pesés aux intervalles de temps suivants : 1 min, 3 min, 5 min, 15 min, 30 min, 1 h, 6h30, 8h30, 1 jour, 5 jours. Avant chaque pesée, les gouttes d'eau présentes à la surface de l'échantillon sont enlevées à l'aide d'un chiffon humide.

II.2.5. Caractérisation mécanique

Les caractérisations mécaniques des isolants thermiques permettent de valider leur aptitude à l'emploi. On demande par exemple d'un isolant au sol d'avoir une certaine incompressibilité pour éviter son tassement au cours du temps. Il est également conseillé d'avoir des isolants qui ne se délaminent pas, ou ne se brisent pas facilement lors de leur transport, manipulation et mise en place. Les caractérisations mécaniques réalisées dans le cadre de cette thèse portent sur les propriétés en compression ainsi que les propriétés mécaniques en flexion et en cohésion définies par les résistances à la flexion et à la traction des *blankets*.

Figure II.2-28 : Machine à traction-compression ZwickiLine Z2.5 (ZwickRoell) au centre CEMEF, Mines ParisTech pour la réalisation des essais mécaniques

II.2.5.a Compression uniaxiale

i Principe

L'échantillon est soumis à une compression uniaxiale à vitesse constante, perpendiculairement aux faces. La force appliquée et le déplacement de l'échantillon sont mesurés au cours de l'essai. L'essai peut être prolongé jusqu'à rupture de l'échantillon s'il y a lieu. La courbe force-déplacement enregistrée à l'allure suivante :

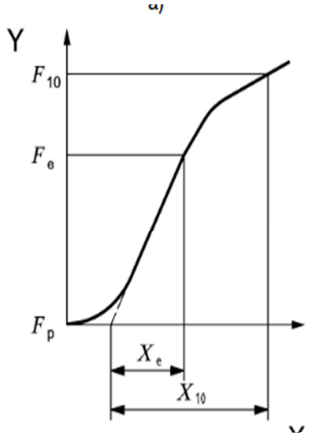


Figure II.2-29: Courbe force-déplacement d'un essai en compression uniaxiale

ou Y représente la force appliquée en N et X le déplacement de l'échantillon en mm. La courbe présente généralement une partie linéaire associée à une déformation élastique du matériau. Au-delà d'un certain point, le matériau entre dans le régime plastique pour lequel la compression entraine des déformations irréversibles. Au-delà encore, le point de rupture à la compression est atteint. En pratique, pour les isolants étudiés, l'essai de compression ne s'effectuera pas au-dessus de la limite élastique du matériau.

À partir de la courbe de la figure précédente, on détermine la contrainte à 10 % de déformation σ_{10} (MPa) comme ci-dessous :

$$\sigma_{10} = \frac{F_{10}}{S_0} \tag{II.35}$$

avec F_{10} (N) la force de compression mesurée lorsque l'échantillon a atteint une déformation $\varepsilon_{10} = X_{10}/d_0$ mesurée à partir de la tangente de la partie élastique. S_0 (mm²) représente la surface initiale de l'échantillon et d_0 (mm) l'épaisseur initiale de l'échantillon.

On calcule le module de compression K(MPa) à partir de la pente de la partie élastique :

$$K = \frac{\Delta F}{\Delta X} . \frac{d_0}{S_0} \tag{II.36}$$

avec ΔF (N) la différence de force mesurée sur la partie élastique, ΔX la différence de déplacement mesurée sur la partie élastique.

ii Appareillage

Les essais de compression uniaxiale sont réalisés avec la machine de traction-compression ZwickiLine Z2.5 (ZwickRoell) au centre CEMEF, Mines ParisTech. La machine est équipée d'un dispositif de mesure du déplacement adapté permettant de mesurer en continu le

déplacement du plateau mobile avec une précision de 0,1 mm. Le capteur de force utilisé permet de mesurer la force jusqu'à 2 kN avec une précision de 0,5 %.

iii Protocole de mesure

Les mesures sont effectuées en s'appuyant sur la norme NF EN 828 [22]. L'échantillon est découpé sous la forme d'un cylindre de diamètre 40 mm, puis est disposé entre les mors de la machine. Une force de précharge de 2 N est appliquée sur l'échantillon et la vitesse de compression est réglée sur 3 $mm \cdot min^{-1}$. L'échantillon est comprimé jusqu'à obtenir un déplacement de 3 mm, puis la machine remonte à une vitesse de 3 $mm \cdot min^{-1}$ afin de mesurer l'effort de relaxation pendant la phase de retour élastique.

II.2.5.b Flexion trois points

i Principe

Un échantillon parallélépipédique est disposé sur deux cylindres d'appui et on applique une force à vitesse donnée au centre de l'échantillon à l'aide d'un troisième cylindre. On enregistre ensuite l'évolution de la force appliquée en fonction du déplacement de l'échantillon.

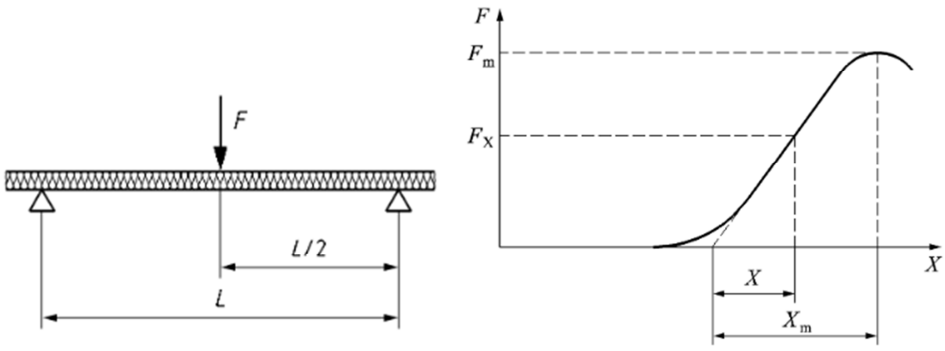


Figure II.2-30: Flexion trois points d'un matériau et courbe force-déplacement

Comme pour la compression, la courbe de flexion force-déplacement, dispose d'une partie linéaire associée au comportement élastique du matériau en flexion. Pour un matériau ductile, l'effort mesuré atteint un maximum avant de redescendre pour éventuellement se rompre. Pour un matériau fragile, la rupture aura lieu pendant la phase de déformation élastique et sera nette. C'est le cas par exemple des aérogels de silice natifs.

On calcule la résistance à la flexion σ_f (MPa) à partir de la courbe de la Figure II.2-30 en utilisant la valeur de la force maximale appliquée au cours de l'essai F_m (N) :

$$\sigma_f = 3\, F_m \frac{L}{2bd^2} \tag{II.37}$$

avec L (mm) la distance entre les deux points d'appui, b (mm) la largeur de l'échantillon et d (mm) l'épaisseur de l'échantillon.

Le module de flexion E_f (MPa) se calcule à partir de la pente m ($N \cdot mm^{-1}$) de la portion linéaire de la courbe force-déplacement :

$$E_f = \frac{L^3 m}{4bd^3} \quad \text{(II.38)}$$

ii Appareillage

Les essais en flexion sont réalisés sur la machine traction-compression ZwickiLine Z2.5 (ZwickRoell) au centre CEMEF, Mines ParisTech. La machine est équipée d'un dispositif de mesure du déplacement adapté permettant de mesurer en continu le déplacement du plateau mobile avec une précision de 0,1 mm. Le capteur de force utilisé permet de mesurer une force jusqu' à 2 kN avec une précision de 0.5 %. Les supports cylindriques sont placés parallèlement l'un à l'autre dans le même plan horizontal. Leur diamètre est égal à 10 mm et leur largeur est égale à 5 cm. La distance entre les deux cylindres est réglable entre 50 mm et 250 mm.

iii Protocole de mesure

Les essais en flexion ont été effectués en s'appuyant sur les normes EN 12089 [23] et ASTM D790-03 [24]. Ces normes recommandent respectivement un rapport épaisseur de l'échantillon/distance entre les deux points d'appui supérieur à 1/6 et 1/16 pour minimiser les erreurs. En particulier, la norme ASTM recommande un rapport supérieur à 1/32 pour les échantillons composites anisotropiques.

En pratique, les efforts mesurés dans les isolants étudiés sont très faibles en flexion et si l'on augmente trop le rapport épaisseur/distance entre points d'appui, cela conduit à diminuer les efforts lors de l'essai et donc la précision de mesure.

Afin de respecter un minimum les normes tout en ayant des forces mesurables par les capteurs utilisés, nous avons choisi un rapport de 1/18 pour les échantillons d'épaisseur 6 mm et 1/13 pour les échantillons d'épaisseur 20 mm.

Les échantillons sont centrés sur les deux appuis cylindriques et recouvrent entièrement la largeur des cylindres. Le troisième cylindre vient au contact de l'échantillon, puis la mesure de la courbe force-déplacement commence. La vitesse d'essai est choisie à 10 $mm \cdot min^{-1}$ et l'essai s'arrête lorsque l'échantillon commence à toucher les portes-cylindres sous l'effet de sa déformation.

II.2.5.c Traction perpendiculaire aux faces

i Principe

L'échantillon est fixé entre deux plaques rigides, le tout placé entre les mors d'une machine de traction. Les plaques sont tirées à une vitesse donnée jusqu'à rupture de l'échantillon.

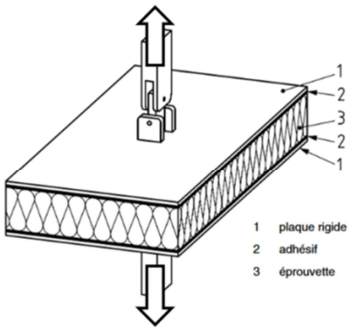


Figure II.2-31: Principe de l'essai de traction sur un isolant

La résistance à la traction perpendiculairement aux faces σ_t (MPa) est calculée à l'aide de la formule suivante :

$$\sigma_t = F_m/S \tag{II.39}$$

avec F_m(N) la force maximale de traction enregistrée et S (mm²) la surface de l'échantillon.

ii Appareillage

Les essais en traction perpendiculairement aux faces sont réalisés sur la machine traction-compression ZwickiLine Z2.5 (ZwickRoell) au centre CEMEF, Mines ParisTech. La machine est équipée d'un dispositif de mesure du déplacement adapté permettant de mesurer en continu le déplacement du plateau mobile avec une précision de 0,1 mm. Le capteur de force utilisé permet de mesurer des forces jusqu' à 2 kN avec une précision de 0,5 %.
Les échantillons sont collés entre deux plaques métalliques avec une colle polyuréthane.

iii Protocole de mesure

Les essais de traction suivent la norme NF EN 1607 [25]. Les échantillons sont découpés en carrés de coté 75 mm puis fixés sur des plaques métalliques avec de la colle polyurethane en faisant attention à ne pas imprégner l'intérieur de l'échantillon, puis on laisse l'ensemble sécher 24 h. La vitesse de traction est de 10 mm · min^{-1}, la force est enregistrée jusqu'à rupture de l'échantillon. Il faut vérifier que la rupture ait bien lieu au sein même de l'échantillon et non au niveau de la colle, sinon il faut écarter les résultats concernés.

II.3 Résultats de caractérisation et discussions

La caractérisation multiphysique de nos matériaux isolants est une étape essentielle dans le processus de développement du produit. Les matériaux composites à base d'aérogel sont relativement nouveaux sur le marché de l'isolation thermique du bâtiment et leurs propriétés restent aujourd'hui peu connues de la littérature scientifique. Le chapitre présent a donc pour objectif d'enrichir la littérature sur ce nouveau type de matériau, mais permet également de guider les choix de fabrication compte tenu des résultats obtenus, afin de répondre aux exigences des normes sur l'isolation thermique du bâtiment tel que les normes EN 1362 [26], EN 13500 [27] ou la certification ACERMI [28]. Outre l'aspect réglementaire, les résultats de ce chapitre ont vocation à être utilisés dans les modèles de transfert thermique du chapitre suivant, en faisant intervenir de nombreux paramètres physiques du matériau et dans les simulations numériques sur l'étude du comportement thermique des bâtiments incluant de tels isolants.

Les caractérisations physiques des matériaux se divisent en cinq groupes majeurs : structure, texture, thermique, hydrique et mécanique. Cela permet de dresser un portrait complet des isolants étudiés et de pouvoir les situer par rapport aux autres isolants existants. La caractérisation du matériau effectuée durant cette thèse s'inscrit dans le cadre du projet HOMESKIN. De ce fait, certaines caractérisations pertinentes du matériau ont été effectuées par un tiers du fait des difficultés d'accès à certains équipements ou par manque de temps. Ces caractérisations seront présentées en Annexe 1 et concernent un complément de la partie caractérisation mécanique, la classe de résistance au feu, la stabilité dimensionnelle et le poudrage.

II.3.1. Caractérisation structurale

II.3.1.a Étude du greffage des liaisons hydrophobes lors de l'étape de modification de surface

L'étape de modification de surface de l'aérogel lors de la synthèse est essentielle afin que celui-ci n'adsorbe pas d'eau au cours de sa durée de vie. L'étape de modification de surface a pour but de remplacer les liaisons résiduelles Si-OH par des liaisons hydrophobes Si-CH_3. Des mesures en spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier ont été effectuées sur des échantillons d'aérogel natif afin de vérifier que le greffage des groupements CH_3 a eu lieu correctement. Deux échantillons sont soumis à étude : le premier est un aérogel de silice natif n'ayant pas subi de traitement d'hydrophobisation, et le second est un aérogel de silice natif hydrophobé, représentatif de la phase aérogel du matériau composite. Les deux échantillons ont été séchés en enceinte climatique à 70 °C pendant 1 jour avant mesure, pour minimiser l'absorption des rayonnements par l'eau adsorbée. La Figure II.3-1 montre les spectres

infrarouges ATR des deux échantillons, chaque pic correspond au mode de vibration d'une liaison.

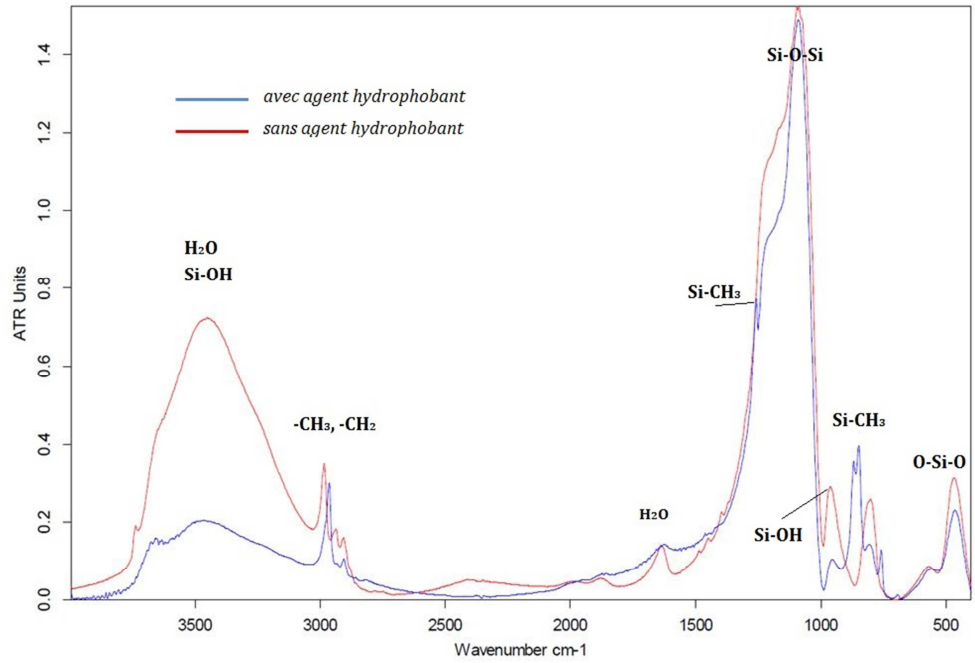


Figure II.3-1: Spectre FTIR d'un aérogel hydrophobé (bleu) et d'un aérogel non hydrophobé (rouge)

À première vue, on observe des différences notables entre les deux spectres :

- L'aérogel non hydrophobé absorbe davantage les rayonnements infrarouges sur la gamme spectrale 3700 – 3000 cm^{-1}. Cette large bande spectrale correspond à la présence de molécules H_2O et de liaisons –OH liées aux groupements silanols. L'intensité de ce pic est proportionnelle à la quantité d'eau adsorbée par l'aérogel. Qualitativement, on peut en déduire que l'agent hydrophobant a drastiquement réduit l'intensité de ce pic. La quantité d'eau présente dans l'aérogel est nettement inférieure pour le cas hydrophobé, ce qui prouve indirectement l'efficacité de l'agent hydrophobant.
- Pour l'aérogel hydrophobé, on observe l'apparition d'un nouveau pic à 1260 cm^{-1}, un double pic dans la région 865-820 cm^{-1}, et d'un autre pic à 760 cm^{-1}. Ces pics d'absorption représentent les vibrations des liaisons $Si\text{-}CH_3$ des groupes tétraméhylsilanes. Ils sont la preuve directe de la greffe des groupements CH_3 sur le squelette de silice.
- Le pic à 964 cm^{-1} a fortement été réduit sur l'aérogel hydrophobé. Ce pic est dû aux vibrations des liaisons hydrophiles Si-OH, remplacées par les liaisons $Si\text{-}CH_3$. On voit que même après application de l'agent hydrophobant, quelques liaisons Si-OH subsistent.

Les autres pics d'absorption observés sont caractéristiques des autres liaisons présentes dans l'aérogel de silice. Le grand pic dans la région 1200 – 1000 cm^{-1}, le pic à 800 cm^{-1} et celui à 470 cm^{-1} sont attribués aux liaisons Si-O-Si et révèle l'existence d'un réseau dense de silice. Les pics dans la région 3000-2900 cm^{-1} sont attribués aux vibrations des liaisons CH_2 et CH_3 des groupements alkoxydes $Si\text{-}O\text{-}C_2H_5$ n'ayant pas été hydrolysés.

Le détail de tous les pics présents sur la Figure II.3-1 est donné dans le tableau suivant :

Pic (cm^{-1})	Mode de vibration	Unité structurale
3000-3500	νOH	≡SiO-H, H-O-H
2970	$\nu_s C\text{-}H$	-CH_3
2950	$\nu_{as} C\text{-}H$	-CH_2
2912	$\nu_{as} C\text{-}H$	-CH_3
1645	δOH	H-O-H
1260	$\delta_s C\text{-}H$	Si-CH_3
1150	ν_{as} *Si-O-Si (mode LO)*	≡Si-O-Si≡
1095	ν_{as}*Si-O-Si (mode TO)*	≡Si-O-Si≡
964	$\nu_p Si\text{-}O$	≡Si-OH
863,845	$\nu Si\text{-}C$	≡Si-CH_3
817	$\nu_s Si\text{-}O$	≡Si-O-Si≡
760	ρCH_2	-CH_2-
580	$\nu Si\text{-}O$	SiO_2 (défauts)
470	$\delta O\text{-}Si\text{-}O$	-O-Si-O

Figure II.3-2: Modes de vibration observés sur les spectres d'aérogel de silice, ν : élongation, ν_s élongation symétrique ν_{as} élongation antisymétrique, δ déformation δ_s cisaillement symétrique ν_p élongation dans le plan, ρ rotation.

La Figure II.3-3 montre l'intensité des pics ATR des deux aérogels de silice natifs. Les pics sont en unité ATR et leur intensité est proportionnelle à la quantité de liaisons covalentes de la fréquence correspondante. En aucun cas les intensités de deux pics d'absorption de différentes fréquences ne peuvent être comparées, car l'intensité ATR est également proportionnelle à la fréquence de vibration. Premièrement, on voit que les deux échantillons sont assez similaires du point de vue des liaisons Si-O-Si (1095 cm^{-1}), qui représentent le squelette de silice. Ainsi, on peut estimer que les deux échantillons ont été synthétisés avec la même stœchiométrie et que la quantité d'aérogel utilisée pour la mesure FTIR est la même. Les autres pics d'absorption peuvent donc être comparés quantitativement entre eux pour la même fréquence de vibration. On peut observer clairement qu'avec l'utilisation de l'agent hydrophobant, les liaisons hydrophiles Si-OH (3450 cm^{-1} et 964 cm^{-1}) ont été diminuées et que les liaisons hydrophobes Si-CH_3 (1260 cm^{-1} et 845 cm^{-1}) sont apparues.

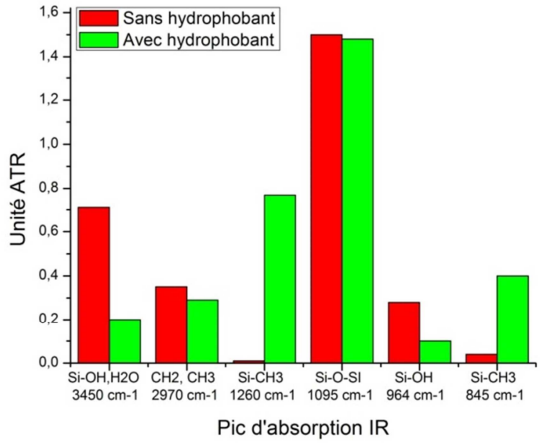


Figure II.3-3: Pics d'absorption IR en unité ATR d'un aérogel sans hydrophobant et d'un aérogel avec hydrophobant

Ces observations permettent de mettre en évidence l'efficacité de l'agent hydrophobant sur un aérogel de silice lors de la phase de modification de surface.

II.3.1.b Analyse EDX

L'analyse EDX permet d'identifier la structure atomique de nos matériaux ainsi que leur proportion massique et atomique. L'analyse EDX sur un aérogel de silice natif permet de vérifier que les étapes de rinçages ont été effectuées correctement en vérifiant qu'aucune impureté résiduelle issue de la synthèse ne persiste dans le produit final. Ces impuretés proviennent des précurseurs, du catalyseur et de l'agent hydrophobant, elles n'interviennent pas dans la structure finale du matériau mais peuvent entraver le processus de séchage de l'aérogel, voire même ses propriétés.

Deux cas sont étudiés, une synthèse d'aérogel faite selon la voie alkoxyde et une autre selon la voie *waterglass* :

- La voie alkoxyde fait intervenir un catalyseur basique NH_4OH pour la gélification, et un catalyseur HCl pour l'étape de sylilation. La présence de composés chlorés ou azotés serait le signe d'un rinçage non complet.
- La voie *waterglass* fait intervenir des précurseurs de silicate de sodium Na_2SiO_3 avec un catalyseur basique NaOH pour la gélification et un catalyseur acide HCl pour la sylilation, produisant du sel lors de la synthèse. Ce sel ne doit pas persister dans le matériau final, et sa présence peut être détectée par l'analyse EDX.

La Figure II.3-4 montre les spectres EDX d'un aérogel de silice synthétisé par voie alkoxyde ou par voie *waterglass*. Le spectre EDX représente le nombre d'électrons émis en cps/eV (coups par seconde par electron-volt) en fonction de l'énergie de ces électrons en keV. L'intensité des pics est proportionnelle au pourcentage massique des composés constituant l'échantillon. Les analyses EDX ont été faites sur plusieurs échantillons pour chaque type de synthèse, mais chaque spectre de la Figure II.3-4 provient d'un seul échantillon dont les résultats sont représentatifs de l'ensemble des échantillons issus de la même synthèse.

On observe que pour les deux types de synthèse, les pics d'énergie nous indiquent uniquement la présence de composés C, O et Si. La présence d'un pic parasite à 2,05 keV est due à la métallisation par dépôt de platine des échantillons, qui est nécessaire aux mesures. On peut donc affirmer que le matériau a été correctement purifié puisqu'aucun composé inattendu n'a été détecté dans le matériau (N,Cl,Na...)

Le Tableau II.3-1 montre dans les deux cas les pourcentages massiques et atomiques des composés calculés à partir des spectres EDX.

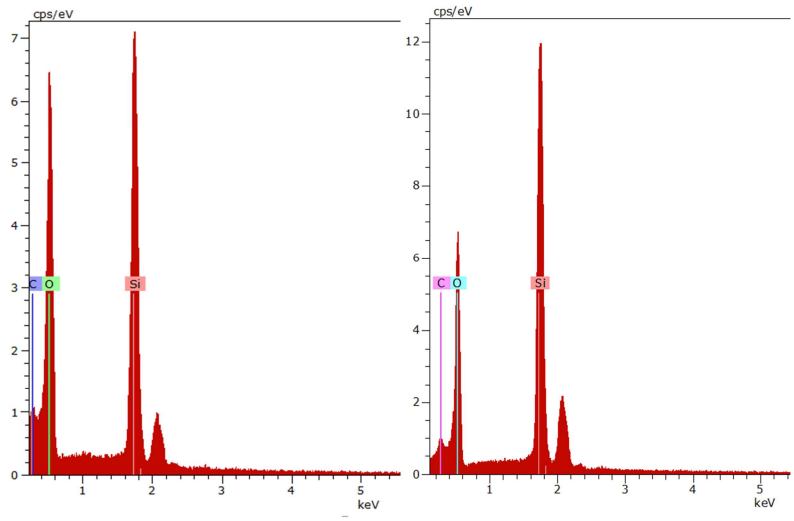


Figure II.3-4: Spectres EDX d'un aérogel de silice natif obtenu par voie alkoxyde (gauche) ou par voie *waterglass* (droite)

	Voie akoxyde		Voie *waterglass*	
Composé	%massique	%atomique	%massique	%atomique
C	12	18	18	26
O	47	55	48	53
Si	41	27	34	21

Tableau II.3-1: Pourcentage massique et atomique des composés des aérogels de silice natifs

On remarque que la proportion silicium/oxygène est respectée. Le squelette du matériau est constitué de silice SiO_2, nous devons donc avoir au moins deux atomes d'oxygène par atome de silicium. La présence d'atomes d'oxygène supplémentaires, comme c'est le cas pour la méthode *waterglass*, peut être également causée par la présence de molécule d'eau adsorbée en surface du matériau, ou simplement par les incertitudes de mesure. La présence de carbone est liée à la greffe des groupements triméthylsilanes $Si(CH_3)_3$ sur les groupes silanols résiduels en surface lors de l'étape d'hydrophobisation.

L'analyse EDX a également était faite sur les mats fibreux afin de connaitre quantitativement leur composition chimique. Ces données peuvent être ensuite utilisées dans les modèles de transfert thermique de matériau composite. Le Tableau II.3-2 montre la composition chimique des mats fibreux utilisés : fibres de verre (GF), PET, fibres de verre aiguilletées (NGF).

GF (% atomique)	PET (% atomique)	NGF (% atomique)
O : 57 %	C : 75 %	O : 56 %
Si : 27 %	O : 25 %	Si : 21 %
Na : 8 %		C : 9.5 %
Mg : 1.5 %		Na : 8 %
Al : 1.2 %		Mg : 1.7 %
Ca : 5.3 %		Al : 0.8 %
		Ca : 3 %

Tableau II.3-2: Composition chimique des mats fibreux utilisés pour les *blankets* aérogels

Les fibres PET sont purement organiques et sont donc moins bonnes conductrices thermiques (λ = 0,15 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) que les fibres de verre, composées en majorité de silice (λ = 0,7 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$). Les analyses EDX ont été faites en pointant le laser sur une seule fibre, mais il faut savoir que les laines GF contiennent un liant organique (résine phénolique) entre les fibres pour maintenir leur cohésion. Les laines NGF ne contiennent pas de liant, car leur cohésion est maintenue grâce aux fibres aiguilletées, cependant les fibres sont ensimés par un mélange d'huile et de PVA[9], d'où la présence de carbone. On estime que les fibres de verre issues des laines GF et NGF sont composés de 60-65 % de SiO_2, 14-16 % de Na_2O, 7-10% de CaO, 2-5 % de Al_2O_3 et 2-5% de MgO.

II.3.2. Caractérisation texturale

II.3.2.a Description texturale générale des matériaux

Les *blankets* aérogels étudiés se présentent sous la forme d'échantillons carrés de taille et d'épaisseur variable. Leur forme géométrique simple nous permet de calculer leur masse volumique apparente par la mesure de leurs dimensions et de leur masse. La fraction massique est déterminée à partir de la densité de la laine et de celle du *blanket* et la fraction volumique est déduite à partir de la densité propre des fibres. La densité propre des fibres PET est 1380 $kg \cdot m^{-3}$, et celle des fibres de verre est calculée à 2775 $kg \cdot m^{-3}$ à partir de la composition chimique des fibres et de la densité de chacun des composés. Les mesures sont effectuées sur les *blankets* PET, GF et NGF, et pour chaque matériau, sur au moins 5 échantillons pour vérifier la répétabilitée de la mesure. Les données sur les laines et mat fibreux sont données par les fournisseurs. Le Tableau II.3-3 résume les propriétés morphologiques des échantillons. Pour rappel, la dénomination des *blankets* fait intervenir l'épaisseur de la laine avant imprégnation. Les *blankets* correspondants peuvent avoir une épaisseur légèrement différente.

[9] Poly Vinyl Acetate

Échantillon	**Épaisseur (mm)**	**Densité apparente ($kg \cdot m^{-3}$)**	**Fraction massique de fibres/mousse**	**Fraction volumique**
Laine GF_30mm	30 ± 3	22,5		
Laine PET_15mm	15 ± 1,5	35		
Laine NGF_6mm	6,5 ±0,9	92		
Laine NGF_12mm	12,7 ± 1,5	144		
Laine NGF_24mm	24 ±3,6	104		
Laine NGF_25mm	25 ±3,7	96		
Laine PET recyclé_30mm	30	24		
Mousse_9mm	9	8		
Blanket				
GF_30mm	27,6 ±2	105	22 %	1%
PET_15mm	14,9 ±0,5	105	33 %	2,5%
NGF_6mm	6,7 ±0,5	160	58 %	3 %
NGF_12mm	13,7 ±1	180	80 %	5 %
NGF_24mm	23,5 ±3	210	50 %	4 %
NGF_25mm	24,8 ±3	180	53 %	3,5 %
PET_recyclé_30mm	28,6 ±0,3	96	25 %	2 %
Mousse_9mm	9,5 ±0,3	90	9%	0,5 %

Tableau II.3-3: Propriétés texturales des *blankets* aérogels et des mats fibreux

Les propriétés de ces laines (densité, épaisseur, proportion de fibres) dépendent des fournisseurs, il ne nous est pas possible de fixer chaque propriété indépendamment les unes des autres pour faire des études approfondies. Néanmoins, le panel de laine étudié nous offre la possibilité d'analyser plusieurs cas : épaisseurs de 6 à 30 mm ; masse volumique de laine de 20 à 210 $kg \cdot m^{-3}$ et fraction volumique de 1 à 5 %, et ainsi de voir l'impact sur les propriétés finales du composite, notamment thermiques et mécaniques.

On remarque que pour toutes les laines d'épaisseur supérieure à 13 mm, la synthèse du *blanket* entraîne un rétrécissement volumique de ce dernier. Ce retrait varie entre 2 % pour le *blanket* PET jusqu'à 25 % pour le *blanket* GF. Les *blankets* NGF_24mm et NGF_25mm présentent un retrait volumique d'environ 5 %, quant aux *blankets* NGF_6mm et NFG_12mm, ils semblent subir une expansion par rapport à la laine initiale en moyenne.

Lors de l'imprégnation et du séchage, les *blankets* subissent des étapes de contraction/expansion. En ajoutant le sol sous forme liquide dans la matrice fibreuse, celle-ci subit une contraction sous l'effet du poids du liquide. Cet effet est d'autant plus important lorsque la densité de la laine est faible, et lorsque sa compressibilité est importante. S'en suit,

un cycle de retraits/expansion du gel lors des étapes de vieillissement (mécanisme de synérèse) et de séchage (pression capillaire, effet *spring back*). Ces effets sur le composite sont proportionnels aux propriétés mécaniques des fibres (rigidité entre autres) et à la fraction volumique de fibres. En effet, un volume important de fibres laisse moins de place pour le gel, et donc diminue les mécanismes de retrait/expansion du gel.

Ainsi, plusieurs cas de figure se présentent selon la laine utilisée (Figure II.3-5). Pour les laines GF, PET, NGF_24mm et NGF_25mm, la laine est placée dans le moule et son entrefer est réglé sur l'épaisseur de la laine. En imprégnant la matrice fibreuse par le sol, celle-ci subit une première contraction due à la pression du liquide. Cette contraction est plus faible pour le PET et les NGF car ces laines sont plus denses en fibres et moins compressible que la laine GF. La laine GF subit une contraction plus importante et on observe a posteriori que le liant phénolique se dissout lors de cette étape. Par la suite, les fibres suivent les phases de retrait/expansion du gel. A fortiori, l'épaisseur finale du *blanket* après expansion ne peut excéder celle de l'entrefer du moule, réglé sur l'épaisseur de la laine. On observe ainsi pour ces *blankets* des épaisseurs finales plus faibles que celle des laines, en particulier pour la laine GF très compressible.

Pour les laines NGF_6mm et NGF_12mm, elles sont placées en parallèle dans le moule (4 laines NGF_6mm ou 2 laines NGF_12 mm) et espacées de quelques millimètres pour permettre la diffusion du sol dans les multiples laines. Ces NGF subissent peu de compression suite à l'imprégnation du sol, et suivent ensuite le cycle retrait/expansion de l'aérogel. L'épaisseur finale du *blanket* n'est pas contrainte par l'épaisseur de l'entrefer, puisque les gels sont espacés les uns des autres et enrobés de sol. Il en résulte après séchage, une fine couche d'aérogel de silice en surface des matériaux. Cette couche est retirée pour toutes les mesures de caractérisation du *blanket*, puisqu'elle ne convient pas pour les applications d'isolation thermique. L'épaisseur finale de ces *blankets* peut ainsi dans certaines conditions (aléas de la diffusion du sol, incertitude sur l'épaisseur de la laine initiale) être supérieure à la valeur nominale de l'épaisseur de la laine.

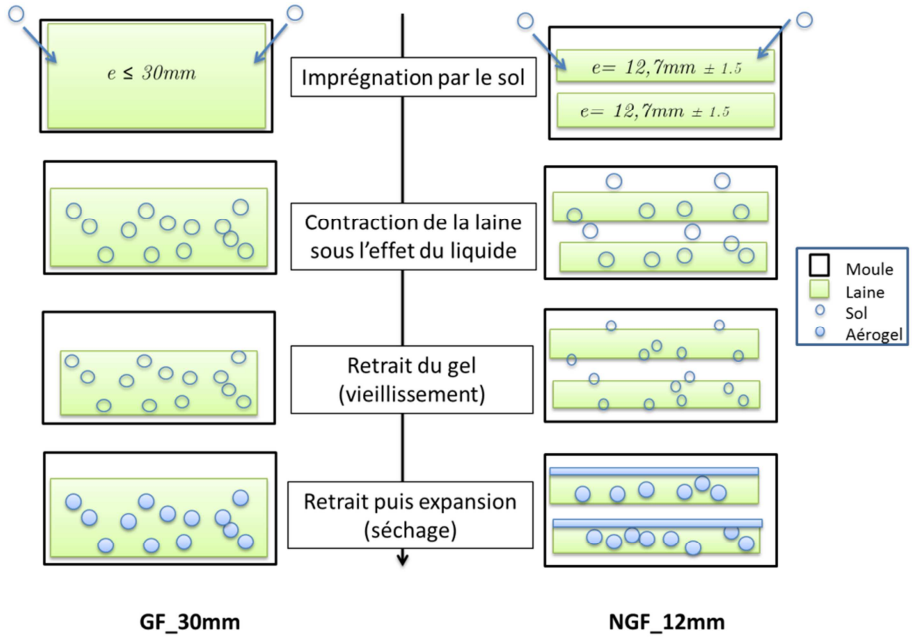


Figure II.3-5: Mécanisme de retrait/expansion selon la méthode d'imprégnation employée

La masse volumique de la phase aérogel de silice ρ_a est obtenue par pycnomètre à poudre et vaut 110 $kg \cdot m^{-3}$ La porosité Π de la phase aérogel est déduite à partir de la densité du squelette de silice ρ_s : $\Pi = 1 - \rho_a/\rho_s$. La densité du squelette de silice est prise à 2000 $kg \cdot m^{-3}$ d'après la littérature [4]. La porosité de la phase aérogel de silice est donc 94,5 % et son volume poreux spécifique associé est 8,59 $cm^3 \cdot g^{-1}$.

II.3.2.b Observations morphologiques

i Microscopie électronique à balayage

Le *blanket* est un matériau composite composé de deux phases (fibres et aérogel) de dimensions caractéristiques totalement différentes. La taille caractéristique des fibres est de l'ordre du micromètre alors que la taille caractéristique des pores est de l'ordre du nanomètre. L'observation morphologique de ces deux phases est faite à l'aide de deux MEB distincts, de pouvoirs grossissants différents.

A. Observation à l'échelle des fibres

Les laines sont tout d'abord observées avant leur imprégnation. Les observations sont effectuées avec un MEB philipps XL30 avec une tension d'accélération de 15 kV et un grossissement de 200. Les clichés MEB des laines sont présentés en Figure II.3-6. On voit que les fibres de verre se présentent sous la forme de faisceaux de fibres alors que les fibres PET semblent être entremêlées de façon aléatoire avec très peu de points de contact. Le diamètre de quelques fibres est mesuré grâce aux outils du MEB et on peut estimer la plage de diamètre de fibre à 1-35 µm pour toutes les laines.

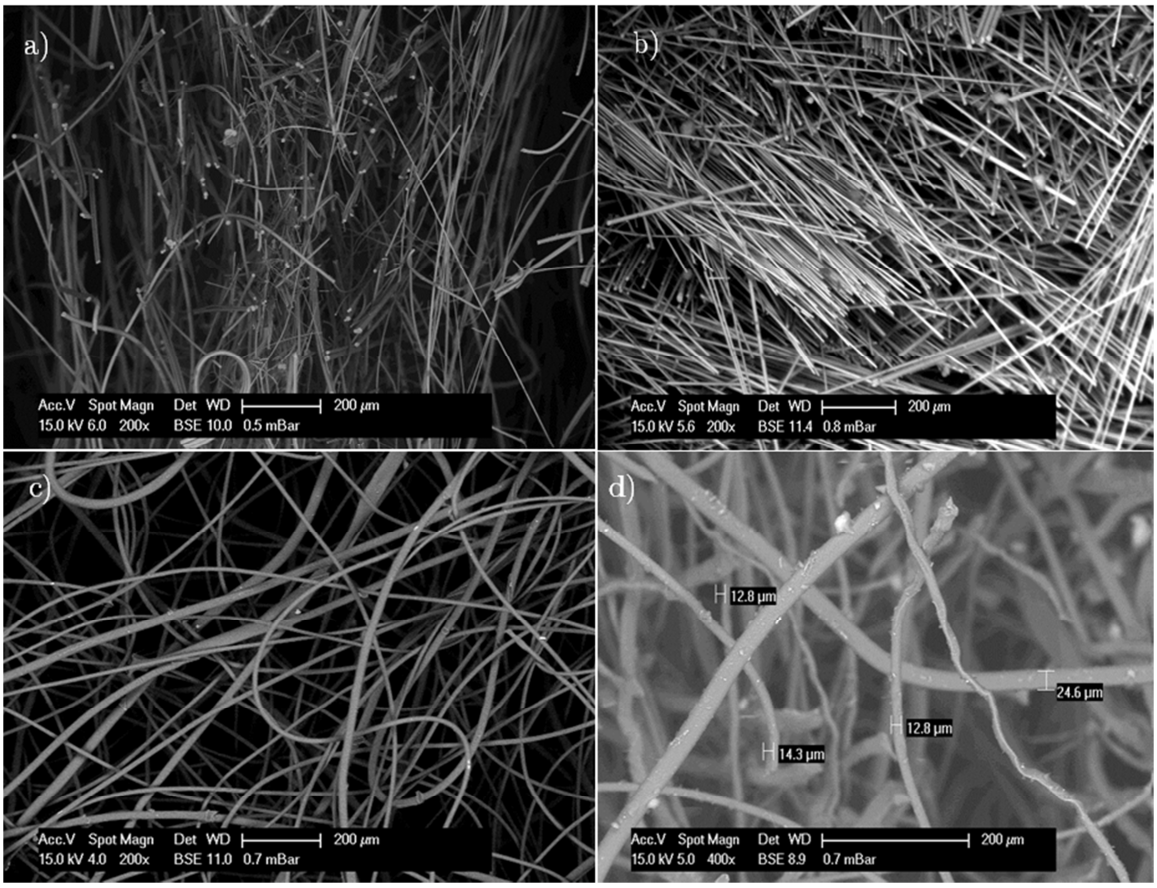


Figure II.3-6: Micrographies MEB des laines utilisées pour la fabrication des *blankets*. a) Laine GF, b) Laine NGF, c) Laine PET, d) Laine PET (grossissement X400).

Les *blankets* sont observés avec le MEB Phillips XL30 avec une tension d'accélération de 15 kV et un grossissement de 200 (Figure II.3-7 a,b,c). Le cliché de la Figure II.3-7d est réalisé avec le MEB SUPRA 40 avec une tension d'accélération de 3 kV et un grossissement de 800.

La grande difficulté de cette caractérisation réside dans la préparation de l'échantillon. Celui-ci doit être coupé de manière à ne pas altérer la morphologie du matériau, ce qui peut être très délicat à faire. Le MEB Philips permet la caractérisation d'échantillons de grandes dimensions (quelques mm^3), qui sont donc plus simples à découper. Le MEB SUPRA 40 nécessite des échantillons extrêmement petits dont la structure ne peut être préservée après découpe. C'est ce que l'on observe sur la Figure II.3-7 d où l'échantillon semble très poreux en comparaison de ce que l'on peut observer sur les clichés pris avec le MEB Phillips XL30.

La microstructure des *blankets* aérogels montre que les phases aérogel et fibres sont bien interpénétrées. Les fibres passent au travers des morceaux de silice et la silice adhère en partie sur les fibres. Comme on le voit sur la Figure II.3-7d, cette adhérence n'est pas totale et certaines parties des fibres sont nues. Il en résulte un certain nombre de macrofissures entre la phase aérogel et les fibres, que l'on peut voir sur les différents clichés. Cependant, il est difficile de savoir si ces macrofissures sont présentes telles quelles dans le *blanket* initial ou si elles sont dues à la préparation de l'échantillon. La cohésion globale de l'aérogel de silice est maintenue par les fibres, mais la fragilité inhérente de l'aérogel conduit à la fracture de certaines parties

du réseau de silice. Ces grains de silice flottent librement à travers les fibres et sont la conséquence du caractère poussiéreux du *blanket*, que l'on observe à l'échelle macroscopique.

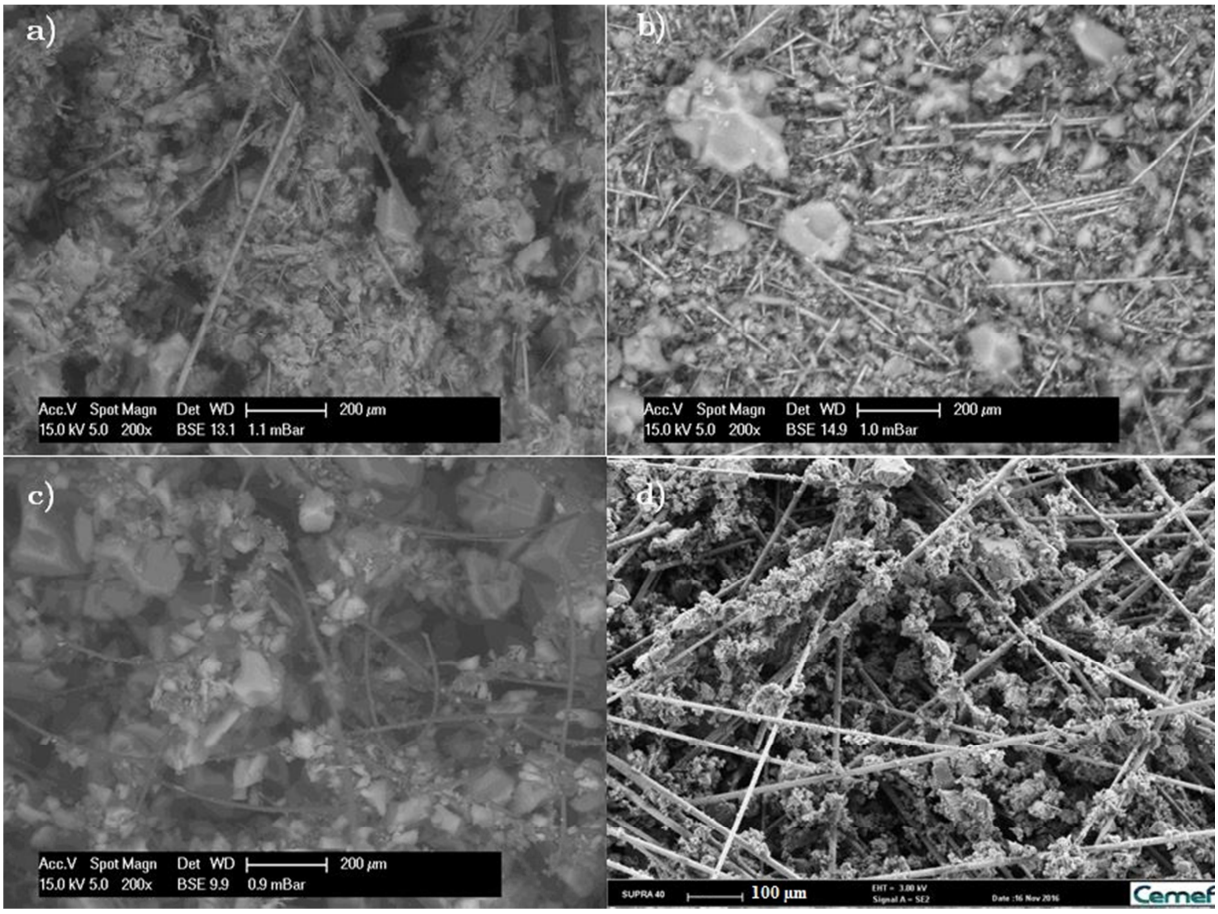


Figure II.3-7: Micrographie MEB des *blankets* aérogels. a) *Blanket* GF, b) *Blanket* NGF, c) *Blanket* PET, d) *Blanket* NGF (SUPRA 40)

B. Observation à l'échelle des « mésopores »

La phase aérogel est observée à l'aide du MEB SUPRA 40 à plusieurs grandissements (x1000 jusqu'à x100 000) avec une tension d'accélération de 3 kV. La texture poreuse est difficile à appréhender à partir des clichés réalisés. On observe sur la Figure II.3-8 la microstructure de l'aérogel de silice à l'échelle des mésopores. Les particules de silice sont agrégées les unes aux autres et se présentent sous forme de grappes. À partir des outils de mesures du MEB, on estime que la taille des nanoparticules se situe entre 8 et 15 nm, et que la taille des pores se situe entre quelques nanomètres et quelques centaines de nanomètres. Ces affirmations sont plutôt spéculatives puisqu'elles sont déduites à partir du cliché 2 D d'un matériau poreux 3 D. De plus, le terme « taille de pores » est d'autant plus compliqué à définir étant donné la nature fractale du réseau poreux.

La texture observée est très similaire aux aérogels natifs séchés en conditions supercritiques. Le séchage par voie ambiante, ainsi que la présence de fibres n'altère pas la microstructure de l'aérogel à l'échelle nanométrique, et donc ses propriétés thermiques.

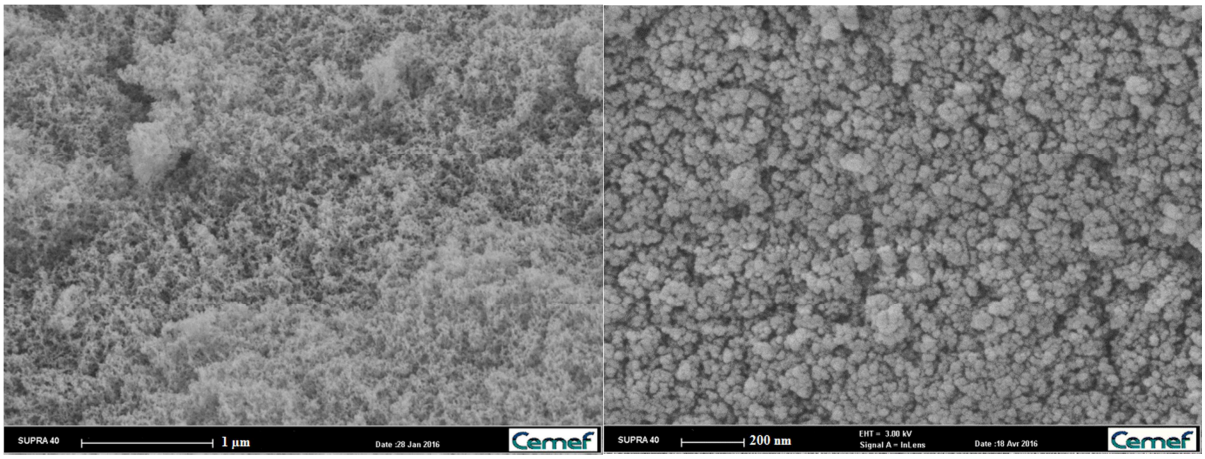


Figure II.3-8: Micrographie MEB Supra de la phase aérogel de silice des *blankets* étudiés

ii Tomographie à Rayon X

Les observations morphologiques par tomographie à rayons X permettent de visualiser la texture interne des *blankets* aérogels en trois dimensions. Les échantillons préparés font 5 mm x 5 mm x 5 mm, et sont relativement gros par rapport à la zone d'étude. La résolution de l'image est 2,5 µm, ce qui ne nous permet pas d'étudier les mésopores de la phase aérogel. Cependant, elle nous permet de visualiser la présence de macropores > 2,5 µm entre la phase aérogel et la phase fibreuse. L'analyse tomographique est effectuée sur 6 échantillons de *blanket* NGF, un *blanket* spaceloft d'Aspen, un *blanket* PET et un *blanket* GF. Pour chaque échantillon, 1000 clichés sont effectués, puis sont reconstruits en une image 3 D continue. La Figure II.3-9 illustre une tranche de *blanket* NGF, après traitement du bruit par un filtre médian 3 D. On y observe les trois phases qui nous intéressent : les fibres, les macropores et le réseau de silice. Les fibres sont facilement dissociables car elles absorbent beaucoup plus le rayonnement X, et apparaissent donc en blanc. La phase aérogel absorbe très peu les rayons X donc le contraste avec les macropores est très faible. Les macropores apparaissent en gris foncé et l'aérogel en gris clair sur le cliché de la Figure II.3-9. Afin de faciliter la visualisation des macropores, ceux-ci sont représentés en rouge à l'aide d'un seuillage du niveau de gris (15 % dans le cas présent). La macroporosité des fissures observées sur le cliché semble plus faible que ce que laisser sous-entendre les images MEB précédentes. Le *blanket* aérogel semble être totalement rempli d'aérogel de silice, complètement interpénétré par le réseau fibreux

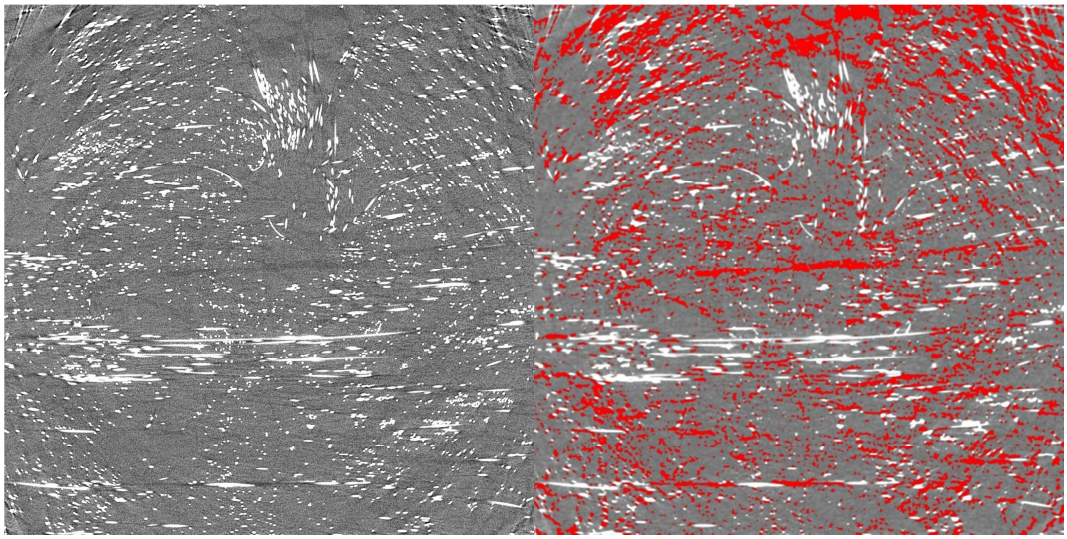


Figure II.3-9: Cliché tomographique d'une coupe de *blanket* NGF (1.25mm x 1.25 mm), les macropores sont accentués en rouge

La Figure II.3-10a montre le réseau fibreux du *blanket* NGF_6mm extrait de l'image volumique. La proportion volumique de fibres est déterminée à 5 % et leur orientation est principalement dans le plan du *blanket*, c'est-à-dire perpendiculaire au flux de chaleur.
De manière analogue, le réseau poreux est isolé de l'image et on détermine la fraction volumique de macropore Figure II.3-10b. Cependant, la précision de mesure est plus faible en raison du faible contraste et du bruit de mesure. Les Figure II.3-10 c,d représentent respectivement la reconstruction orthocoupe et 3 D du blanket NGF. On y observe en noir les macropores et les fissures et en blanc l'aérogel de silice et les fibres. Sur les images 3 D, on identifie clairement les fissures, qui semble s'être propager à travers tout l'échantillon étudié, ainsi que la présence de bulles d'air qui ont persisté après le séchage du gel. La connaissance de la fraction macroporeuse de fissures est capitale car elle permet de considérer les fissures dans les modèles de transfert thermique de *blankets* aérogels afin de mieux les décrire. Il en est de même pour la fraction de fibres et leurs orientations. Ces deux paramètres (fraction fibreuse et macroporeuse) sont notamment ce qui différencie le transfert thermique d'un *blanket* aérogel de celui d'un aérogel natif

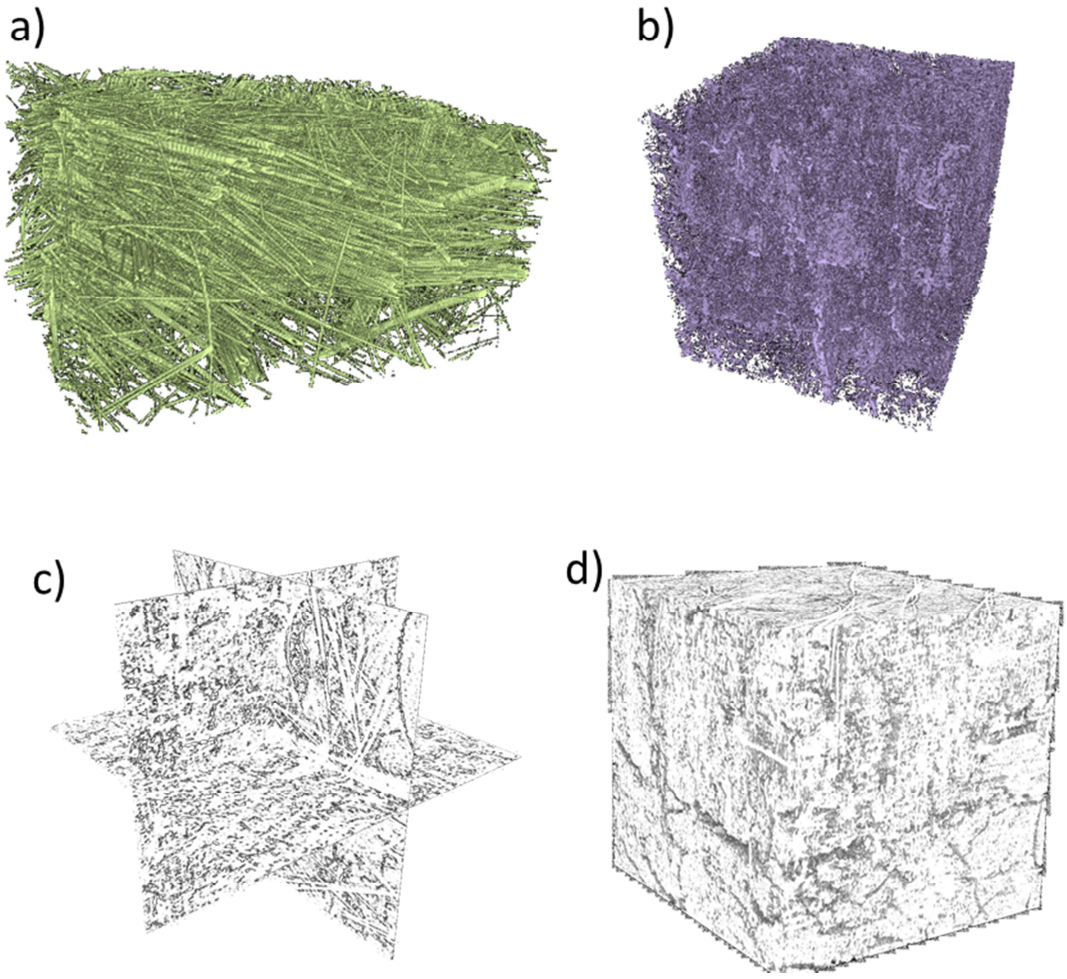


Figure II.3-10: a) Vue 3 D du réseau fibreux du *blanket* NGF(1,25mm x 1,25 mm x 1,25 mm), b) Vue 3 D du réseau macroporeux du *blanket* NGF, c) Vue orthocoupe du blanket *NGF*, d) Vue 3 D du *blanket* NGF.

Sur l'ensemble des échantillons étudiés, seuls 3 échantillons de *blanket* NGF et l'échantillon Spaceloft avaient une texture représentative du *blanket* à la sortie du moule. Les autres échantillons étaient tout fracturés à cause de leurs manipulations passées, ou bien à cause de la préparation de l'échantillon (voir Figure II.3-11). Les échantillons préservés ont une fraction volumique de macropores d'environ 6-8 % et des largeurs caractéristiques de fissures d'une dizaine de microns alors que les échantillons fracturés ont une fraction volumique de macropores de 25 à 44 % et des largeurs caractéristiques de fissures de plusieurs dizaines de microns (Tableau II.3-4 et Figure II.3-12). Pour les échantillons NGF préservés, il est intéressant de constater que la fraction macroporeuse est du même ordre de grandeur que celle de l'échantillon Spaceloft, séché par voie supercritique. Ainsi le séchage ambiant n'affecte que très peu la présence de macropores dans les *blankets* produits par la société Enersens et étudiés dans cette thèse.

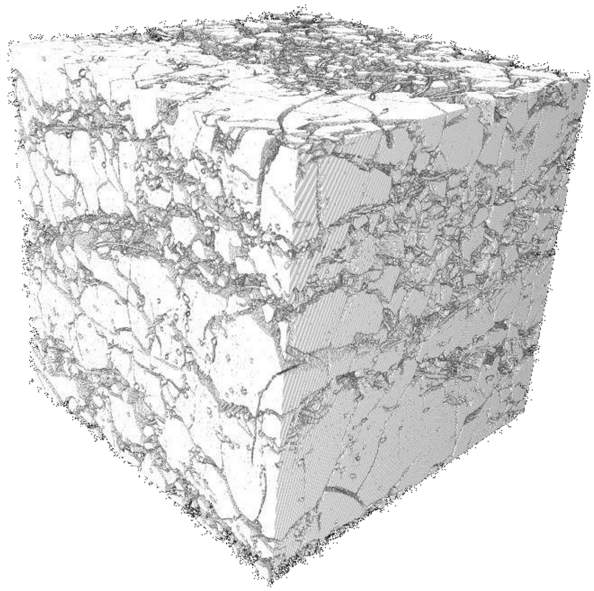


Figure II.3-11: Cliché tomographique d'un échantillon de *blanket* PET fracturé (1,25 mm x 1,25 mm x 1,25mm), on y observe des macrofissures ainsi que des bulles d'air.

Le Tableau II.3-4 résume les proportions de fibres et de macropores pour chaque type de *blanket*, calculées à partir des images volumiques. Les fractions volumiques de fibres trouvées sont proches de celles calculées « à la main » dans la partie précédente. On détermine également les répartitions des diamètres de fibres et de largeur de macropores à l'aide de l'outil *Local Thickness* du logiciel imageJ (voir Figure II.3-12).

Echantillon	État de l'échantillon	% fibres	% macropores
Laine NGF	Laine NGF non imprégnée	5%	x
NFG_01	préservé	5,6%	8%
NGF_02	préservé	4,9%	6%
NGF_03	fracturé	6,5%	44%
NGF_04	préservé	7%	7,8%
NGF_05	fracturé	6,6%	25%
NGF_06	fracturé	4,6%	30%
PET	fracturé	2%	30%
GF	fracturé	1,7%	40%
Spaceloft	préservé	5%	7,7%

Tableau II.3-4 : Fraction fibreuse et macroporeuse des échantillons de *blanket* aérogel

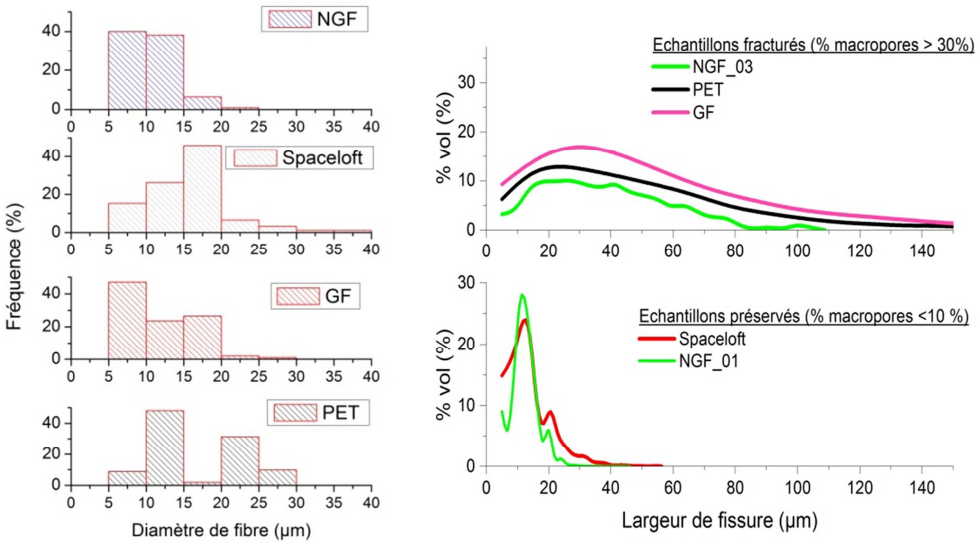


Figure II.3-12: (gauche) Distribution de taille de fibres, (droite) Distribution de largeur de fissure

Le diamètre des fibres est celui que l'on retrouve classiquement dans les isolants fibreux, entre 5 et 30 microns. Les macropores détectés par l'analyse tomographique correspondent à des fissures de la phase de silice provenant soit du séchage, soit de la manipulation de l'échantillon. Les échantillons préservés ayant une macroporosité globale inférieure à 10 % présentent des fissures de largeur caractéristique 10 µm que l'on suppose inhérentes au séchage du *blanket*. Les échantillons fracturés présentent une distribution de largeur de fissures plus grandes avec des largeurs pouvant atteindre 100 µm. Ces macro-fissures sont probablement dues à l'historique mécanique des échantillons ainsi qu'à leur découpe pour l'analyse. Néanmoins, les *blankets* utilisés en tant qu'isolant thermique subiront des traitements similaires lors de leur cycle de vie (transport, manipulation et découpe), il faut donc avoir conscience de la dégradation que cela implique.

II.3.2.c Caractérisation de la texture poreuse par sorption d'azote

i Détermination de la surface spécifique

La surface spécifique des échantillons a été déterminée avec l'appareil ASAP 2020 sur la gamme de pressions relatives 0-0,3. Elle joue un rôle important dans les phénomènes d'adsorption d'eau et dans le transfert thermique de la phase gazeuse. Dans le présent paragraphe, nous étudions la surface spécifique de la phase aérogel seule, des *blankets* aérogels NGF et des mousses aérogels. Certains des échantillons ont été séchés en conditions supercritiques tandis que les autres l'ont été en utilisant le séchage micro-ondes.

Avant les mesures, 100 mg d'échantillon sont séchés sous vide primaire à 70 °C pendant 10 h.

La

Figure II.3-13 montre les résultats de surface spécifique des trois catégories d'échantillon. La phase aérogel, sous forme de granules ou de poudre, dispose d'une surface spécifique moyenne

de 789 $m^2 \cdot g^{-1}$, proche de celle des aérogels monolithiques que l'on trouve dans la littérature [29]. L'incorporation de fibres lors de la synthèse, afin d'obtenir les *blankets,* mène à des surfaces spécifiques nettement inférieures, de l'ordre de 270 $m^2 \cdot g^{1}$. Cette chute de surface spécifique est principalement due à la masse des fibres ajoutées, offrant peu de surface géométrique en comparaison de la phase aérogel. Elle est directement proportionnelle à la fraction massique de fibres du *blanket* comme étudié dans [30]. L'incorporation d'une mousse mélamine ne décroît que légèrement la surface spécifique, 746 $m^2 \cdot g^{-1}$ en moyenne, du fait de sa faible fraction massique. Il semblerait que la méthode de séchage, supercritique ou micro-ondes, ait relativement peu d'influence sur la surface spécifique des échantillons, en considérant les erreurs expérimentales.

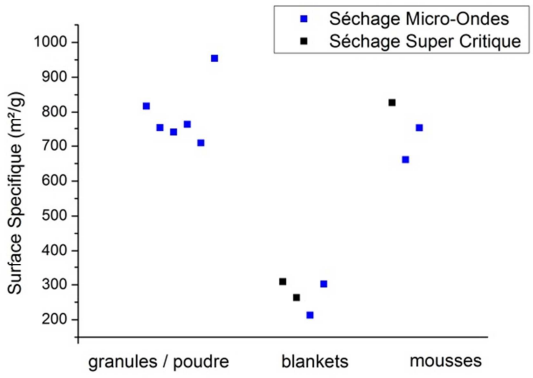


Figure II.3-13 : Surface spécifique des matériaux étudiés à base d'aérogel de silice

À partir du volume poreux spécifique de l'aérogel calculé par pycnomètre à poudre et de la surface spécifique, on peut donner une estimation de diamètre moyen de pores en utilisant l'équation : $d_m = 4V_p/S_{BET}$. Avec un volume poreux de 8,59 $cm^3 \cdot g^{-1}$ et une surface spécifique moyenne de 790 $m^2 \cdot g^{-1}$, on trouve un diamètre de pores moyen de 40 nm. Ce diamètre de pores moyen est très représentatif de ce que l'on trouverait pour un aérogel natif classique, séché par voie supercritique. On en conclut que le séchage électromagnétique étudié n'a aucune influence négative sur la phase aérogel de silice.

ii Analyse de l'isotherme complète

Les isothermes complètes ont été tracées pour la phase aérogel de silice sur la gamme de pression relative 0-1, avec un temps d'équilibre de 5 s et 15 s, afin de vérifier si ce dernier influe sur les mesures. Le temps total d'analyse varie entre 12 h pour 5 s d'équilibre et 48 h pour 10s d'équilibre. La Figure II.3-14 montre les isothermes tracées pour les deux temps d'équilibre considérés. On remarque qu'elles sont semblables et indépendantes du temps d'équilibre, notamment vis-à-vis du volume total de gaz adsorbé. D'après la classification IUPAC, la présence d'une hystérésis de ce type dans le cycle de sorption correspond à un schéma IV H2, caractéristique d'un échantillon mésoporeux constitué de pores interconnectés de tailles

différentes. La surface spécifique est déterminée aux basses pressions, est vaut en moyenne 789 $m^2 \cdot g^{-1}$.

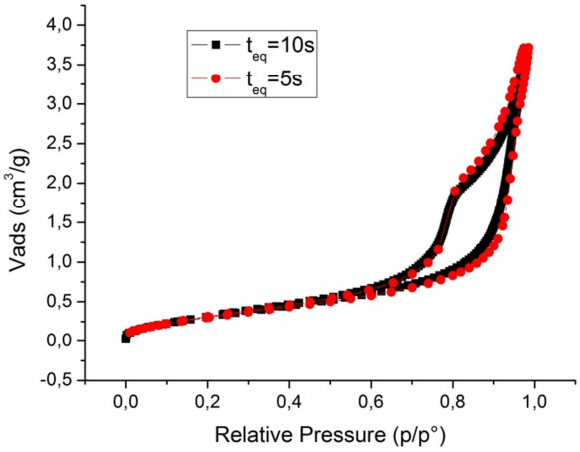


Figure II.3-14: Isotherme de sorption de la phase aérogel de silice

Le volume poreux spécifique est déterminé à partir de la valeur maximale de gaz adsorbé lors de l'isotherme à une pression relative proche de 1, on trouve un volume poreux spécifique de 3,55 $cm^3 \cdot g^{-1}$. On constate que le volume poreux spécifique calculé lors de la sorption d'azote est inférieur à celui calculé à l'aide du pycnomètre à poudre (8,59 $cm^3 \cdot g$). On a vu que cela est dû soit au temps d'équilibre, soit à une fraction macroporeuse non détectable ou encore que l'échantillon subit une contraction lors de la mesure de sorption d'azote. On a montré que le temps d'équilibre n'influe pas sur les mesures, nous supposons donc qu'il s'agit d'une combinaison des deux derniers effets. Nous faisons cependant l'hypothèse que l'effet de contraction est prédominant sur la présence d'une fraction macroporeuse compte tenu de la taille des pores observés en MEB et de la littérature.

Théoriquement, la variation de volume de l'échantillon engendrée par la sorption d'azote suit l'équation (II.12). En considérant un module de compression volumique de 3,5 MPa pour notre aérogel de silice, on peut tracer la variation volumique de l'échantillon au cours de la sorption (Figure II.3-15). On constate que l'échantillon subit une variation de volume élastique jusqu'à 25 % lors de la sorption, réduisant ainsi la taille de pores mesurée, notamment pour les hautes pressions. Pour des aérogels à plus faible module, la compression est accentuée et peut atteindre 50 % du volume relaxé. Ce biais est souvent négligé dans les études de distribution de taille de pores de matériaux compressibles et conduit à des résultats erronés. Nous utiliserons la correction proposée par Reichenauer [6] pour tenir compte de cet effet, en calculant le diamètre réel de pores de la façon suivante : $D = D'.(V_0 - V_s)/((V/V_0)V_0 - V_s)$,
avec D' le diamètre de pores déterminé par la méthode BJH . V_s est le volume spécifique de la phase solide égale à 0,5 $cm^3 \cdot g^{-1}$, V_0 le volume de l'échantillon au repos égal à 9,09 $cm^3 \cdot g^{-1}$, et V/V_0 la variation de volume sous compression isostatique.

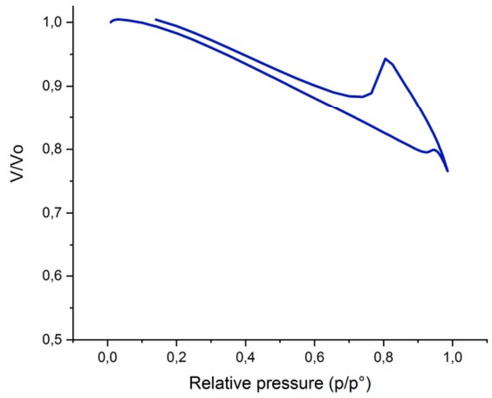


Figure II.3-15 : Variation relative du volume de l'échantillon d'aérogel lors de l'isotherme de sorption. La figure a été tracée pour un module de compression K=3,5 MPa.

La Figure II.3-16 représente le volume de pores cumulé lors du cycle de sorption/désorption et la distribution de taille de pores de l'aérogel. On voit que la détection des pores diffère selon les deux branches à cause des effets de compression, du réseau de pores et du *Tensile Strength effect*, mais que le volume poreux total n'est pas impacté. La distribution de taille de pores est calculée à partir de la méthode BJH, sur la branche d'adsorption et de désorption, puis elle est corrigée en utilisant le modèle de Reichenaeur.

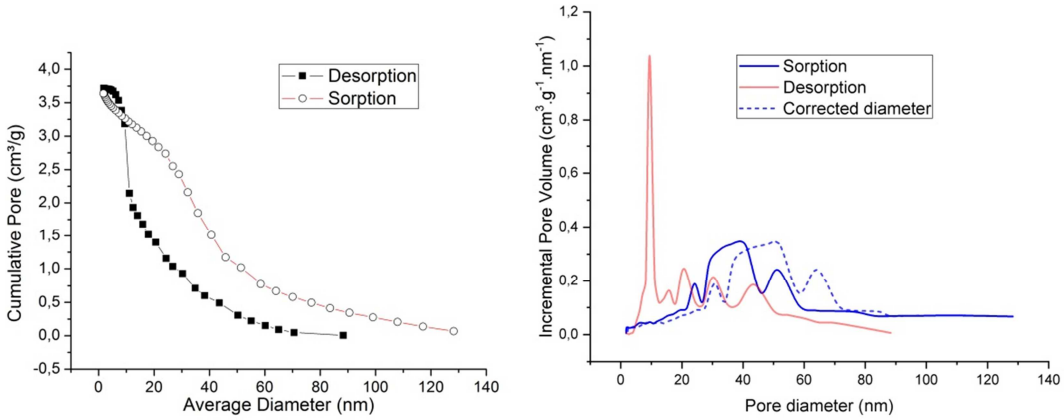


Figure II.3-16 : (gauche) Volume de pores cumulé lors du cycle sorption/désorption (droite) Distribution de la taille de pores de la phase aérogel de silice. Les variations soudaines du volume incrémental de pores sont attribuées aux effets du réseau de pores discutés dans la partie précédente.

On observe sur la distribution de taille de pores issue de la désorption un pic artefact dû au Tensile Strength Effect à 9,7 nm. C'est pour cela que l'on considèrera uniquement la courbe de sorption pour évaluer la distribution de taille de pores. Celle-ci nous indique une distribution de taille de pores entre 20 et 60 nm avec un diamètre de pores moyen de 40 nm.

En tenant compte de la compression de l'aérogel au cours de la mesure, on calcule le diamètre réel à partir du modèle de Reichenaeur en prenant K=3,5 MPa pour le module de compression volumique. Cela a pour effet de faire glisser la distribution de taille de pores vers les grands diamètres. Après correction, on évalue le diamètre de pores moyen à 50 nm.

II.3.3. Caractérisation hydrique

II.3.3.a Sorption d'eau du matériau

Les courbes de sorption d'eau sont tracées en Figure II.3-17 pour les *blankets* PET, GF et NGF ainsi que pour leurs laines respectives. Les échantillons ont été préalablement séchés à 70 °C et 10 % d'humidité relative jusqu'à obtention d'une masse constante. Tout en étant maintenus à température constante de 23 °C, les échantillons sont placés successivement dans une série de 4 ambiances d'essai dont l'humidité relative augmente par paliers entre 20 % et 90 % afin de tracer la courbe de sorption du matériau. En partant du dernier point de la courbe de sorption, la courbe de désorption est obtenue en plaçant les échantillons dans une série de 4 ambiances d'essai décroissantes. Pour les laines, seulement les courbes de sorption sont tracées à titre comparatif. Le temps de conditionnement entre chaque palier d'humidité est déterminé à 24 h d'après les résultats de mesure de séchage de la Figure II.3-18 . Cela permet d'effectuer des mesures journalières avec une erreur sur la masse inférieure à 1 %.

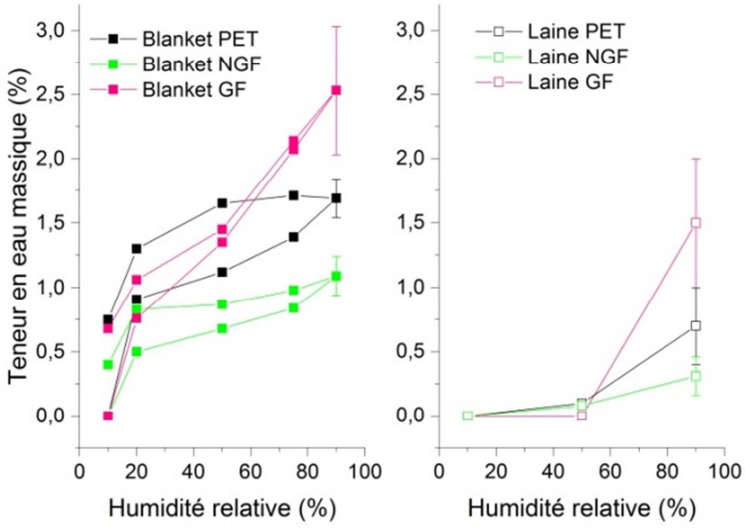


Figure II.3-17: Courbe de sorption des *blankets* et des laines à 23 °C

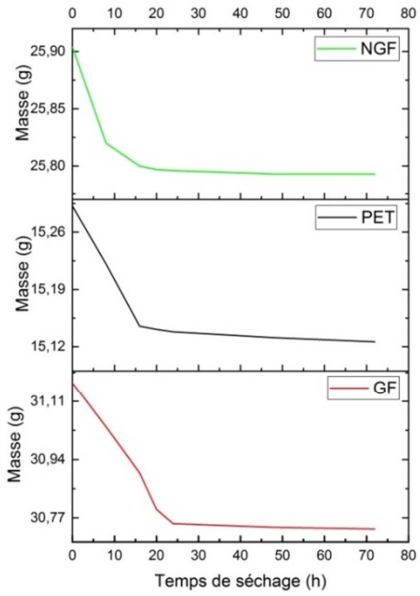


Figure II.3-18: Temps de séchage des *blankets* aérogels. La masse d'eau résiduelle au bout de 24h est très proche de celle adsorbée pour des durées supérieures à 72 h.

On remarque que la teneur en eau massique des laines est extrêmement faible (< 1,5 %), avec cependant un léger détachement de la laine GF. Cela peut s'expliquer par la présence de la résine phénolique comportant des groupements chimiques OH pouvant créer des liaisons hydrogènes avec les molécules d'eau. Les courbes de sorption des *blankets* présentent une hystérésis caractéristique d'un matériau mésoporeux dans lequel se produit une condensation capillaire. L'adsorption d'eau à 90 % d'humidité relative des *blankets* aérogels reste faible (< 3 %) et semble suivre les tendances de leur laine respective. Les différences observées sont dues aux propriétés hydriques mêmes des laines, mais également à la fraction volumique de la phase aérogel. Celle-ci offre de nombreux points de contact possibles aux molécules d'eau à cause de sa grande surface spécifique, et accentue les phénomènes de condensation capillaire.

On peut considérer les *blankets* aérogels étudiés comme hydrophobes en comparant nos valeurs avec la référence [31] qui rassemble les résultats de sorption d'eau d'aérogels de silice hydrophobes synthétisés par de nombreux auteurs. Nos résultats sont également prometteurs si on les compare aux matériaux ThermalWrap (Cabot) et Cryogel Z (Aspen) qui présentent des teneurs en eau entre 2 et 3 % à 90 % d'humidité relative [32].

La teneur en eau à 98 % d'humidité a également été étudiée pour les *blankets* GF, NGF, PET et la mousse afin de déterminer le comportement hydrique des matériaux dans la région de saturation, et d'évaluer leur comportement au séchage. Les échantillons sont séchés pendant une semaine dans un dessiccateur contenant du gel de silice maintenant l'humidité relative à 1 %. Ils sont ensuite placés dans une enceinte contenant une solution saline saturée maintenant l'humidité relative à 98 % et leur teneur en eau massique est calculée. Les résultats de reprise hydrique et de séchage sont présentés ci-dessous :

Échantillon	Reprise hydrique 1%→ 98%	Séchage 98%→1%
Mousse	4,7 %	-4,8 %
GF	5,1 %	-5,2 %
PET	1,6 %	-1,9 %
NGF	3,5 %	-3,6 %

Tableau II.3-5: Comportement hydrique des matériaux entre 1% et 98% d'humidité relative. Les valeurs de reprise hydrique sont données avec une erreur standard de 10%.

Les résultats de reprise hydrique à 98 % montrent que les *blankets* sont très hydrophobes. Les *blankets* adsorbent un maximum de 5 % d'eau en masse, ce qui est relativement faible pour un environnement d'humidité aussi extrême. On voit qu'il y a une forte adsorption d'eau entre 90 % et 98 % d'humidité relative si l'on compare ces résultats aux courbes de sorption précédentes. D'un point de vue visuel et tactile, les *blankets* à base de fibres (NGF, GF, PET) sont inchangés alors que la mousse semble avoir subi une dégradation structurelle, nécessitant une manipulation délicate de l'échantillon pour ne pas le briser.
Le comportement au séchage des échantillons est également très bon puisque toute l'eau est désorbée permettant aux échantillons de revenir à leur état hydrique initial.

II.3.3.b Mesure de l'angle de contact

Les mesures d'angle de contact complètent la caractérisation de l'hydrophobicité des matériaux en s'intéressant au comportement d'une goutte d'eau avec la surface du matériau. L'angle de contact avec une goutte d'eau a été estimé pour les *blankets* et laines GF, PET et NGF, la mousse mélamine et le *blanket* Spaceloft, à l'aide du goniomètre KRUSS DSA 10 et au moins trois gouttes d'eau ont été analysées pour chaque échantillon. Les résultats d'angle de contact sont montrés sur le Tableau II.3-6, toutes les laines et les *blankets* ont un angle de contact supérieur à 125 °. La Figure II.3-19 illustre une goutte d'eau en contact avec la surface de la laine et du *blanket* (NGF dans le cas présent).

Échantillon	Angle de contact	Incertitude
Laine NGF	138°	0,2
Laine PET	144°	0,1°
Laine GF	136°	0,1°
Blanket NGF	150°	0,4°
Blanket PET	127°	0,5°
Blanket GF	133°	0,1°
Mousse mélamine	140°	0,1°
Spaceloft	134°	0.2°

Tableau II.3-6 : Angle de contact entre une goutte d'eau et la surface du matériau

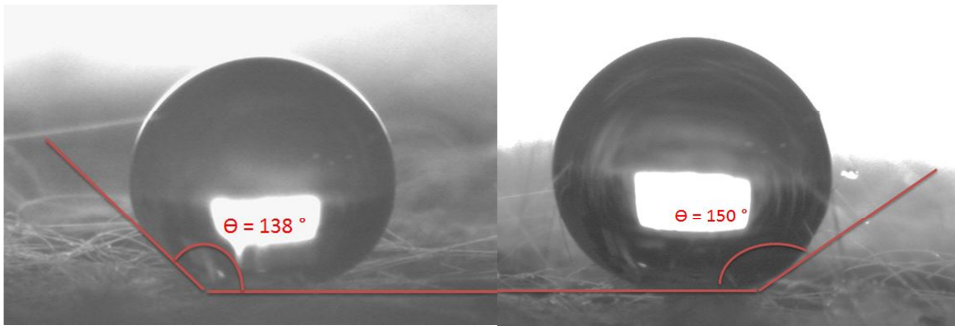


Figure II.3-19 : Angle de contact entre une goutte d'eau et la surface de la laine NGF (gauche), et entre une goutte d'eau et la surface du *blanket blanket* NGF (droite)

La surface de nos échantillons est bel et bien hydrophobe ($\theta > 90°$), mais on ne peut affirmer que cela est dû au traitement d'hydrophobisation de l'aérogel. En effet, la présence de fibres en surface du *blanket* joue un rôle important dans le caractère hydrophobe de sa surface.

II.3.3.c Transfert de vapeur d'eau

Le transfert de vapeur d'eau dans les parois d'un bâtiment est un paramètre essentiel à prendre en compte pour les risques de condensation et les performances thermiques de la paroi. Il y aura condensation interne dans une paroi si localement, la pression de vapeur est égale à la pression de saturation. Cela peut avoir pour effet de créer des zones mouillées en permanence, provoquant une perte d'isolation thermique, la déstructuration de l'isolant ainsi que l'apparition de moisissures. Le plus souvent, la vapeur d'eau transite de l'intérieur vers l'extérieur et il est recommandé de favoriser des matériaux de construction et d'isolation perméables à la vapeur d'eau pour éviter toute surcharge d'humidité dans les parois. Pour une isolation intérieure, il faut que la perméabilité à la vapeur d'eau des couches de la paroi augmente de l'intérieur vers l'extérieur, afin que la vapeur puisse s'évacuer facilement vers l'extérieur. Néanmoins, selon le climat, il arrive qu'en été la vapeur d'eau transite de l'extérieur vers l'intérieur. Si elle est bloquée par un éventuel pare-vapeur, il y a risque de condensation en arrivant contre celle-ci, diminuant ainsi le potentiel de séchage de la paroi.
Le coefficient de résistance à la diffusion de vapeur d'eau μ a été déterminé pour les *blankets* NGF. Les échantillons ont été placés dans un récipient usiné sur mesure et ont été soumis à une différence d'humidité relative de part et d'autre de l'échantillon. Le coefficient de résistance à la diffusion de vapeur d'eau a été mesuré pour un état sec (entre 1 % et 50 % d'humidité relative) et pour un état humide (entre 50 % et 98 % d'humidité relative). La Figure II.3-20 montre la variation de masse de l'ensemble échantillon-récipient induite par la migration du flux de vapeur d'eau à travers l'échantillon. L'instant zéro correspond à un temps de 24h après la mise en place de l'échantillon dans l'enceinte climatique, temps jugé nécessaire à la mise en place de l'équilibre hydrique. La masse varie de façon linéaire avec le temps, et on en déduit les valeurs du coefficient de résistance à la diffusion de vapeur d'eau d'après les équations (II.28)-(II.32). On trouve $\mu = 5{,}1$ en conditions humides, et $\mu = 8$ en conditions sèches. Ces valeurs

sont à comparer avec les valeurs de µ classiques des isolants fibreux ($\mu = 1$) et des isolants synthétiques (μ = 60-150). D'après les règles ACERMI, les valeurs de μ calculées classent l'isolant *blanket* dans la catégorie E1 qui correspond à une perméabilité des isolants supérieure à 0,3 $g \cdot m^{-2} \cdot h^{-1} \cdot mmHg^{-1}$

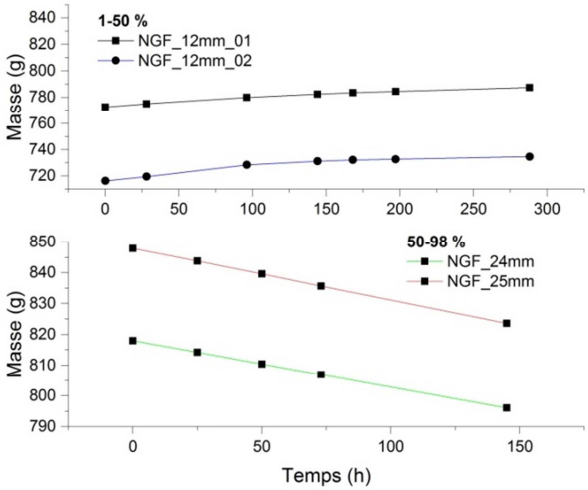


Figure II.3-20 : Variation de masse de l'ensemble récipient-échantillon

Les valeurs de μ ont été calculées pour les *blankets* NGF uniquement, mais on peut supposer que l'on trouverait des résultats proches pour les *blankets* PET , GF et mousse étant donné que le flux d'humidité est principalement gouverné par la phase aérogel, présente à plus de 90 % dans tous les échantillons.

II.3.3.d Transfert d'eau liquide

Au même titre que la vapeur d'eau, l'eau liquide peut traverser les parois des bâtiments. L'eau liquide apparaît lorsqu'il y a condensation de la vapeur d'eau dans la paroi, par infiltration de l'eau de pluie ou par les remontées capillaires provenant du sol. C'est l'eau liquide qui est responsable de la dégradation des parois et il faut pouvoir l'évacuer efficacement en cas de surcharge hydrique. Les matériaux capillaires sont très utiles en cas de présence d'eau liquide car ils aident à la faire migrer hors de la paroi. Cet effet capillaire des matériaux est caractérisé par le coefficient d'absorption d'eau liquide A ($g \cdot m^{-2} \cdot s^{-0.5}$) ou le coefficient de transport capillaire (aussi appelé diffusivité hydrique) D_W. Les deux grandeurs sont reliées par la relation suivante :

$$D_W = 3.8\left(\frac{A}{w_f}\right)^2 . 1000^{\frac{w}{w_f}-1} \qquad \text{(II.40)}$$

avec w_f la teneur en eau libre et w la teneur en eau.

Le coefficient d'absorption a été mesuré pour les *blankets* NGF en immergeant les échantillons dans l'eau, et en suivant la variation de masse des échantillons. En traçant, la variation de

masse surfacique en fonction de la racine carrée du temps pour trois échantillons de blanket NGF_12mm, on obtient une droite dont la pente représente le coefficient d'absorption liquide.

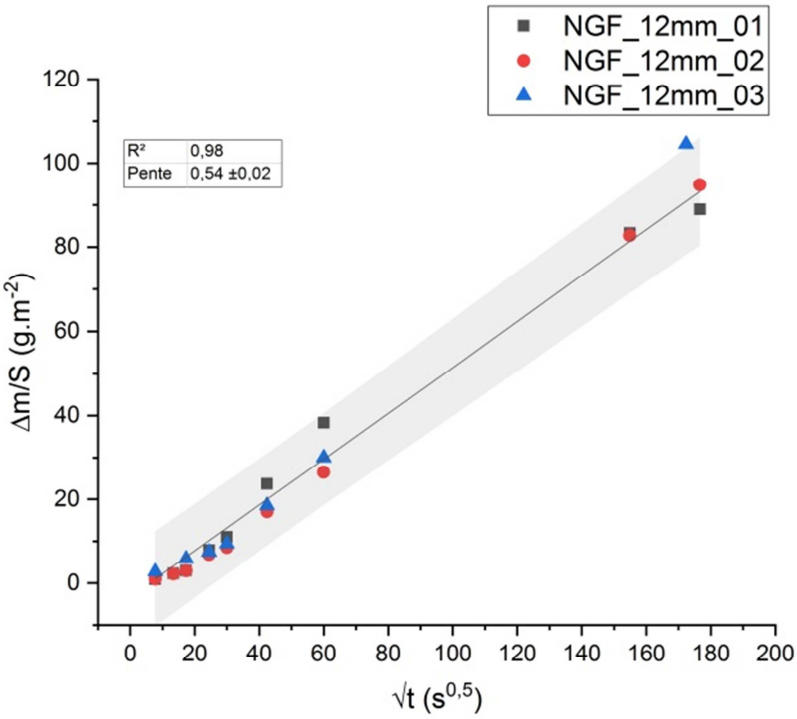


Figure II.3-21: Variation de masse surfacique des *blankets* NGF_12mm au cours du temps

L'interpolation des points de mesures permet de déterminer $A = 0{,}54\ \mathrm{g \cdot m^{-2} \cdot s^{-0.5}}$. Cette valeur est assez basse et indique une circulation lente de l'eau liquide à travers l'isolant. Du fait du réseau poreux tortueux et de l'hydrophobicité de surface de l'aérogel de silice et des fibres, l'eau peine à traverser le *blanket* aérogel. Cependant, la présence de macrofissures de grandes dimensions favorise la circulation de l'eau. En extrapolant la courbe de Figure II.3-21, on en déduit que les *blankets* ont une absorption d'eau à court terme (24 h) de 0,13 $\mathrm{kg \cdot m^{-2}}$ et une absorption à long terme (28 jours) de 0,6 $\mathrm{kg \cdot m^{-2}}$, ils respectent donc la norme NF EN 1602 [33] qui spécifie les exigences auxquelles doivent satisfaire les produits manufacturés en laines minérales utilisés dans l'isolation thermique. La norme recommande une absorption d'eau à court terme inférieure à 1 $\mathrm{kg \cdot m^{-2}}$ et une absorption d'eau à long terme inférieure à 3 $\mathrm{kg \cdot m^{-2}}$. La nature non hydrophile des *blankets* les classe dans la catégorie O2 des règles ACERMI de comportement à l'eau.

II.3.4. Caractérisation thermique

La caractérisation thermique des matériaux de type *blanket* étudiés est l'élément principal de ce chapitre de caractérisation. Les propriétés thermiques de ces matériaux, en particulier la conductivité thermique, conditionnent les performances énergétiques des bâtiments isolés. Tout d'abord, la chaleur spécifique des matériaux est évaluée pour permettre d'utiliser des modèles

globaux de simulation des bâtiments avec plus de précision. La conductivité thermique des matériaux est ensuite analysée pour différents environnements (humidité relative, pression...).

II.3.4.a Chaleur spécifique à pression constante

La chaleur spécifique décrit la capacité d'un matériau à stocker la chaleur, mais influence également le transfert thermique en régime dynamique. Plus celle-ci est élevée, plus lente sera la propagation de la chaleur à travers le matériau (à densité et conductivité constante). Il s'agit d'un paramètre clé qui contribue à la masse thermique du mur et qui influence notamment le déphasage thermique des murs ainsi que le facteur d'amortissement.

Généralement, la contribution des matériaux isolant à la masse thermique d'un mur est très réduite en raison de leur faible densité. Au-delà de l'intérêt purement scientifique, la connaissance de la chaleur spécifique de l'isolant nous permettra par la suite de simuler numériquement les transferts de chaleur à travers les parois d'un bâtiment équipé par de tels isolants.

La chaleur spécifique a été évaluée à l'aide d'un DSC 8000 sur la plage de température 0-40 °C. Les chaleurs spécifiques de l'aérogel de silice et des fibres ont été mesurées séparément, puis la chaleur spécifique des *blankets* a été calculée par la loi des mélanges :

$$C_{p,blanket} = \%m_{fibres} . C_{p,fibres} + \%m_{aérogel} . C_{p,aérogel} \qquad \text{(II.41)}$$

avec C_p la chaleur spécifique et $\%m$ la fraction massique.

Les résultats de caractérisation de chaleur spécifique sont présentés en Figure II.3-22 pour chaque phase séparément (fibres, aérogel) et pour les *blankets*.

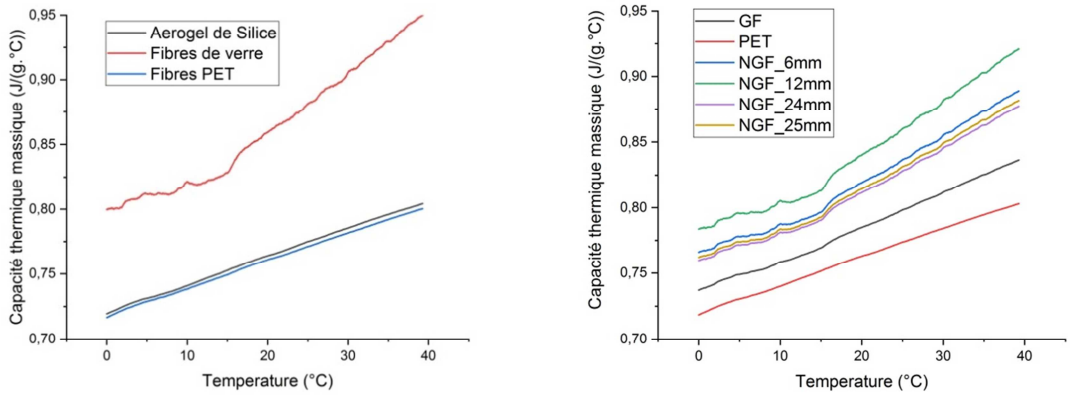


Figure II.3-22: Chaleur spécifique de chacune des phases constituants les *blankets* (gauche), et des *blankets* (droite)

La chaleur spécifique des fibres et de l'aérogel varie de façon linéaire avec la température entre 0 °C et 40 °C. La chaleur spécifique de l'aérogel est très proche de celle de la silice amorphe et celle des fibres correspond à ce que l'on rencontre dans l'isolation thermique du bâtiment (0,7-1,4 $J \cdot g^{-1} \cdot K^{-1}$). Les chaleurs spécifiques des matériaux étudiés varient peu dans la gamme de

température de mesure. Cette gamme de température correspond aux températures couramment rencontrées dans la thermique du bâtiment, on peut donc approximer la chaleur spécifique comme constante pour les simulations numériques, avec une valeur de $C_p = 0{,}8\ \mathrm{J \cdot g^{-1} \cdot K^{-1}}$.

II.3.4.b Conductivité thermique

i Conductivité thermique en conditions ambiantes

La conductivité thermique de tous les *blankets* étudiés ainsi que des laines a été mesurée en conditions ambiantes (T = 23 °C et RH = 50 %) avec un FOX 150. Les mesures sont faites en mode *AutodX* pour les *blankets*, ainsi les plaques viennent au contact des échantillons avec une légère pression. Les mesures sont effectuées sur les laines en saisissant manuellement leurs épaisseurs, car elles sont trop compressibles pour utiliser le mode *AutodX*. Pour chaque matériau, au moins 5 échantillons font l'objet de mesures. Les conductivités thermiques des laines avant imprégnation sont données dans le Tableau II.3-7. On constate que les valeurs mesurées sont très proches les unes des autres, quel que soit le type de fibre, ou le tissage (aiguilleté ou non) et on observe une légère corrélation entre la fraction volumique de fibres et la conductivité thermique des laines. Plus la fraction de fibre est élevée, plus la conductivité thermique de la laine est élevée.

Laine	**Conductivité thermique ($\mathbf{mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$)**	**Fraction volumique de fibres**
GF	30,8	1%
PET	31,8	2,5%
NGF_6mm	31,4	3%
NGF_12mm	34,5	5%
NGF_24mm	33	4%
NGF_25mm	33	3,5%

Tableau II.3-7: Conductivité thermique des laines avant imprégnation

Les résultats de conductivité thermique de tous les matériaux à base d'aérogel de silice sont présentés sur la Figure II.3-23. Un *blanket* Spaceloft fait l'objet de mesures comme référence, afin de situer la performance de nos produits sur le marché de la super-isolation. Le *blanket* Spaceloft a été réalisé en conditions supercritiques par la société Aspen, leader mondial dans la fabrication de *blanket* aérogel. Sa conductivité thermique a été évaluée à 14,4 $\mathrm{mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$ dans notre laboratoire par mesures en microfluxmètre. Tous les autres matériaux ont été séchés par séchage électromagnétique et caractérisés par le fluxmètre FOX 150. Le matériau le plus prometteur d'un point de vue thermique est la mousse avec une conductivité thermique de 15,3 $\mathrm{mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$. Les composites à base de fibre eux, présentent des disparités dans les mesures avec des conductivités thermiques allant de 15,8 à 18,7 $\mathrm{mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$.

On s'attendait à ce que la présence de fibres dans le sens transverse des *blankets* NGF augmente la conductivité thermique effective du matériau, mais l'effet n'est pas si évident à observer. L'augmentation a bien lieu pour les NGF mais également pour le PET recyclé qui ne présente pas de fibre aiguilletée. L'influence de la fraction volumique de fibres semble jouer un rôle mineur sur la conductivité thermique, mais non négligeable. Aucune corrélation nette n'a été observée entre la fraction volumique de fibres des *blankets* et la conductivité mesurée.
Les granules aérogels ont une conductivité thermique d'environ 20 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, avec peu d'effet de la part de la granulométrie. La valeur de conductivité thermique plus élevée des granules s'explique par la présence de vide intragranulaire, augmentant légèrement la conduction gazeuse.

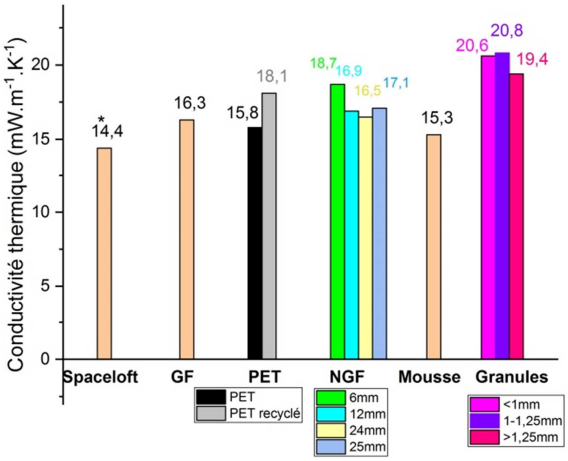


Figure II.3-23: Conductivité thermique des *blankets* aérogels, mousses et granules en conditions ambiantes (T=23 °C, HR=50%). Les valeurs de conductivité thermique sont données avec une erreur de 5%. * La conductivité thermique du *blanket* Spaceloft est mesurée avec le microfluxmètre, contrairement à tous les autres échantillons (Voir remarque ci-dessous).

Les performances thermiques des *blankets* aérogels étudiés (λ = 15-19 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) sont comprises entre celles des produits Spaceloft, Aspen (λ = 14-16 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) – séchés par voie supercritique – et celles des produits ThermalWrap, Cabot (λ = 21-24 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) séchés par voie évaporative. Compte tenu du mode de séchage novateur mis en oeuvre, ils se positionnent comme des concurrents prometteurs pour la super-isolation thermique du bâtiment.

ii Remarque importante sur le microfluxmètre

Dans la mesure du possible, la conductivité thermique des échantillons est mesurée à l'aide du fluxmètre FOX 150 avec des dimensions d'échantillon de 150 mm x 150 mm. Cependant, il arrive que certains échantillons aient une taille si petite que le FOX 150 devienne inutilisable. Ces « petits » échantillons sont alors caractérisés à l'aide du microfluxmètre décrit dans la partie II.2.3.av « Méthodes expérimentales ». C'est le cas du *blanket Spaceloft*, ou des *blankets* NGF_6mm séchés par voie supercritique (voir partie suivante). En effet, le séchage

supercritique nous impose une taille d'échantillons assez faible (environ 50 mm x 50 mm) et l'utilisation du microfluxmètre devient indispensable.

Il reste néanmoins possible de caractériser un échantillon « large » au fluxmètre FOX 150 ainsi qu'au microfluxmètre afin de vérifier la correspondance entre les deux appareils. C'est dans ce but que nous avons effectué des séries de mesure sur les deux fluxmètres. Quelques résultats de mesure sont présentés dans le Tableau II.3-8. On observe systématiquement une différence d'environ 6-10 % entre les deux appareils. Le microfluxmètre a tendance à sous-estimer la valeur de la conductivité thermique des matériaux étudiés. Cette différence peut s'expliquer par l'utilisation de capteurs de flux thermique de petites dimensions (1 cm de diamètre) ayant une moins bonne précision de mesure, ainsi que par les effets de bords plus marqués pour les petits échantillons. Dans la plupart des études, nous considérerons la valeur issue du FOX 150 comme la valeur retenue sauf mention contraire, car l'appareillage est garanti par le constructeur.

Matériau	Conductivité (Fox 150) $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	Conductivité (Microfluxmètre) $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
GF	16,3	14,9
PET	15,8	14,8
PET_recyclé	18,2	16,7
NGF_6mm	18,6	16,6
Laine NGF_6mm	31,4	29,1
Laine NGF_12mm	34,5	30,8
Mousse	15,3	14,1
Spaceloft	N/A	14,4

Tableau II.3-8: Différence de conductivité thermique observée entre les mesures par FOX 150 et microfluxmètre

En particulier, la conductivité du *blanket* Spaceloft ayant été effectuée par microfluxmètre (λ = 14,4 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) est sous-évaluée. Si l'on souhaite comparer cette valeur avec celle des autres échantillons, il faut avoir conscience de la différence de 6-10% observée entre les deux appareils. Dans ce cas, une valeur probable de la conductivité thermique du Spaceloft mesurée au FOX 150 serait λ = 15,2-15,7 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Cette valeur est plus proche de celle donnée par le producteur Aspen λ = 15 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$.

iii Influence de l'humidité

L'influence de l'humidité sur la conductivité thermique des matériaux a été étudiée. La mesure de conductivité thermique est faite avec le FOX 150 et les échantillons sont conditionnés préalablement pendant 24 h dans 3 ambiances d'humidité relative croissante : 10 % pour un état sec, 50 % pour un état ambiant, et 90 % pour un état humide. L'influence de l'humidité sur la conductivité thermique des *blankets* est tracée sur la Figure II.3-24 et détaillée sur le

Tableau II.3-9. On sait également que l'humidité n'a aucune influence sur les mats fibreux seuls d'après les résultats des mesures de sorption des laines présentés au chapitre (II.3.3.a).

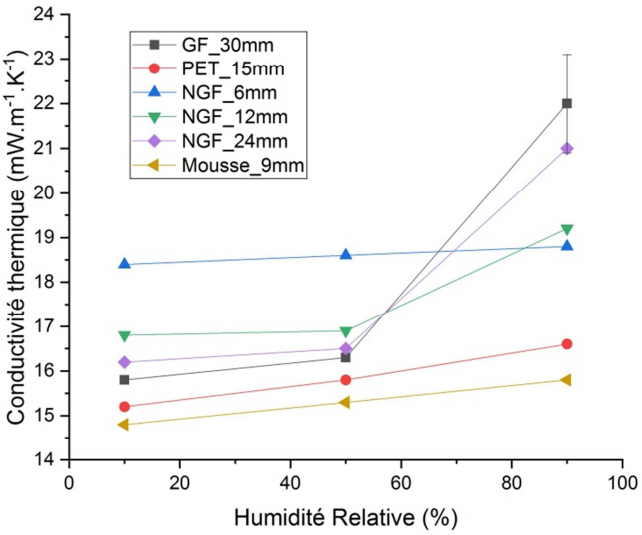


Figure II.3-24: Influence de l'humidité sur la conductivité thermique des *blankets.*

Matériau	Conductivité thermique ($mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$)		
Humidité Relative	**HR =10%**	**HR =50%**	**HR =90%**
Laines GF,NGF_6mm,PET	31	31	31
GF_30mm	15,8	16,3	22
PET_15mm	15,2	15,8	16,5
NGF_6mm	18,4	18,7	18,8
NGF_12mm	16,8	16,9	19,2
NGF_24mm	16,2	16,5	21
Mousse_9mm	14,8	15,3	15,8
Spaceloft_5mm*	14	14,4	14,6
Cryogel z_5mm**	15,5	16,3	18
ThermalWrap_5mm**	21,5	23	24

Tableau II.3-9 : Influence de l'humidité relative sur la conductivité thermique des *blankets* aérogels,*mesuré au microfluxmètre, **mesures *in situ* issues de [32]. Les valeurs de conductivité thermique sont données avec une erreur de 5%.

Globalement, on observe que la conductivité thermique augmente avec l'humidité, pour tous les matériaux étudiés. La présence d'humidité se manifeste par l'augmentation de la conductivité thermique gazeuse et par l'apparition du phénomène de condensation capillaire dans les plus petits pores de la phase aérogel. Cette condensation capillaire provoque l'apparition d'une phase liquide, bien plus conductrice que l'air sec (environ 30 fois), ce qui augmente la conductivité thermique effective du matériau. A priori, il semble y avoir une corrélation entre

l'épaisseur du matériau et l'augmentation de conductivité thermique mesurée à 90 % d'humidité relative. Cette différence observée est due à un biais de mesure et non à une différence intrinsèque du matériau. En effet, nous ne disposons pas du matériel nécessaire pour effectuer des essais *in situ* de conductivité thermique sous ambiance humide. Le matériau est d'abord conditionné, puis sa conductivité thermique est mesurée en conditions ambiantes. Cependant, l'application d'un gradient de température durant la mesure de conductivité thermique modifie inévitablement la répartition initiale de la teneur en eau et entame le séchage du matériau. Le flux d'humidité migre de l'échantillon vers l'extérieur et l'évaporation de l'eau à lieu sur la face chaude du fluxmètre. Ce flux d'humidité dépend de la perméabilité du matériau et il est limité par la surface de l'échantillon, qui est la même pour tous les échantillons, quelle que soit leur épaisseur. Lors de la mesure, deux échantillons identiques et d'épaisseurs différentes désorberont la même quantité d'eau en un temps donné, tant que le front d'humidité n'aura pas atteint le plan médian du matériau. Ainsi, un échantillon plus épais contiendra, en pourcentage massique, une masse d'eau plus importante à la fin de la mesure comme l'illustre la figure ci-dessous.

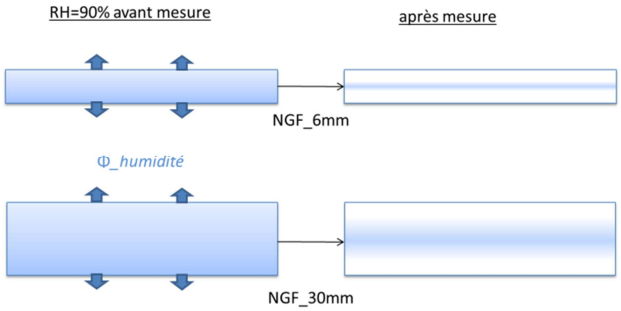


Tableau II.3-10: Séchage des échantillons au court de la mesure. En fin de mesure (HR=90%), les échantillons les plus épais auront une fraction massique d'eau plus importante.

Les échantillons plus épais seront plus représentatifs du comportement des *blankets* en conditions réelles de forte humidité. En fin de mesure de conductivité, la pesée des échantillons permet d'estimer l'humidité relative présente dans l'échantillon grâce aux courbes de sorptions qui relient masse et humidité relative. Pour des échantillons fins, l'humidité relative redescend à 60-70 %, alors que pour un échantillon plus épais, elle reste vers 80 %.

L'augmentation de conductivité thermique induite par l'humidité (conditionnement à 90 % d'humidité relative) atteint 30 à 40 %.

iv Étude de sensibilité au mode de séchage et à l'agent hydrophobant

Une étude de sensibilité au mode de séchage et à l'agent hydrophobant a été effectuée sur le *blanket* NGF_6mm. Pour ce faire, certains gels ont été séchés par voie supercritique, d'autres par séchage électromagnétique et d'autres par voie évaporative (T = 140 °C pendant 2 heures). Parmi ces gels, on dispose également de gels non-hydrophobés afin d'analyser l'influence de l'étape d'hydrophobisation. La conductivité thermique est mesurée par

microfluxmètre du fait des petites tailles d'échantillon imposées par le séchage supercritique (5 cm x 5 cm).

Les résultats de conductivité thermique des *blankets* NGF_6mm sont présentés ci-dessous :

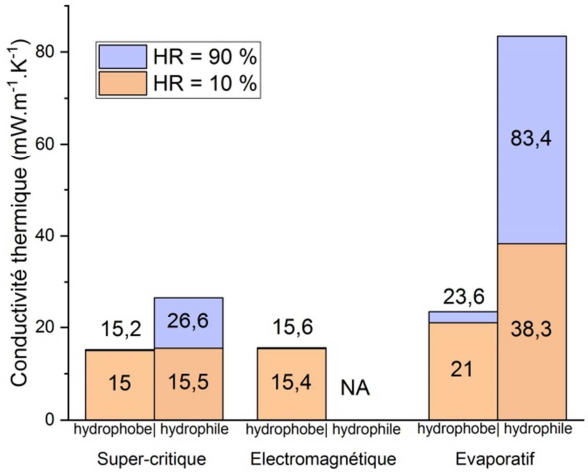


Figure II.3-25: Influence du mode de séchage sur les *blankets* NGF_6mm

On voit nettement l'importance de l'agent hydrophobant dans le processus de synthèse des *blankets* aérogels. Bien qu'ayant vu dans le chapitre précédent que les mesures de conductivité thermique d'échantillons fins en ambiance humide étaient légèrement biaisées, on peut facilement comparer les échantillons sur la Figure II.3-25, dont les mesures de conductivité thermique ont été effectuées dans les mêmes conditions. Les échantillons hydrophiles adsorbent tellement d'eau, qu'il leur est impossible de sécher rapidement. Leur conductivité thermique augmente de façon très significative, en particulier pour le cas évaporatif. Pour ce dernier, l'absence d'agent hydrophobant lors du séchage cause une densification du matériau importante, réduisant globalement la porosité et la taille de pores du *blanket* ainsi que l'apparition de plus de condensation capillaire. Il en résulte alors un matériau moins performant d'un point de vue thermique que ce soit en conditions sèches ou humides.

Pour le cas hydrophobe, on peut noter les résultats très similaires entre le mode de séchage électromagnétique et supercritique, avec des conductivités thermiques très proches de l'aérogel de silice natif et une faible dépendance à l'humidité relative.

v Influence de la pression

Des mesures de conductivité thermique en fonction de la pression environnante ont été menées dans une enceinte capable d'atteindre une pression de 10 µbar. Ces essais permettent dans un premier temps d'évaluer la conductivité thermique qu'aurait notre matériau sous vide. Ensuite, ces mesures peuvent être utilisées pour déterminer la contribution de la conduction gazeuse au transfert thermique du *blanket* , et pour obtenir des informations complémentaires sur la texture du *blanket* (voir chapitre III). Les mesures ont été faites pour les *blankets* NGF, PET et les lits granulaires à une température de 23 °C. Les échantillons sont placés dans l'enceinte et la pression est diminuée jusqu'à atteindre 10 µbar. Les mesures sont effectuées en

augmentant successivement la pression par paliers jusqu' à atteindre la pression atmosphérique et la conductivité thermique est mesurée avec le FOX 150. Pour la mesure de conductivité thermique des lits granulaires, nous avons disposé 250 cm^3 de granules dans un contenant isolant (voir Figure II.3-26) puis légèrement compacté le tout. L'ensemble est placé dans le FOX 150 pour effectuer la mesure de conductivité thermique sous vide.

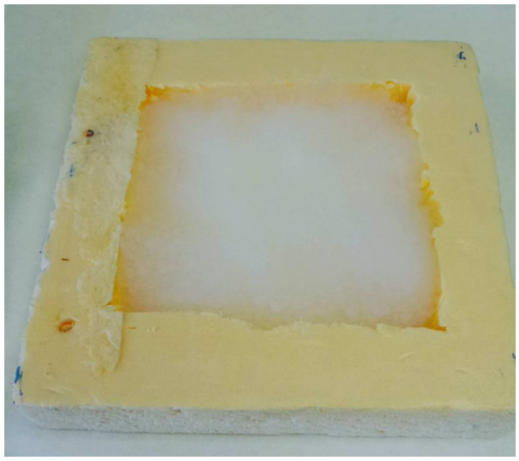


Figure II.3-26: Préparation du lit granulaire pour la mesure de conductivité thermique

Des lits granulaires avec 3 types de granulométrie ont été étudiés. : Un lit granulaire de type « mortier » ayant une taille de granule entre 1,25 mm et 3,5 mm, un lit granulaire de type « poudre » avec des tailles de particule entre 1 mm et 1,25 mm, et un autre lit granulaire de type « poudre » avec des tailles de particule inférieures à 1 mm. La Figure II.3-27 montre la conductivité thermique des lits granulaires mesurée entre 10 µbar et 1 bar. Théoriquement, la conductivité thermique devrait converger vers une valeur limite à basse pression, mais les capacités de l'appareillage ne nous permettent pas de connaître précisément cette limite. Toutefois, la conductivité thermique du lit granulaire (particules < 1 mm) semble converger vers une valeur de 7 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Il est bien connu que la conductivité thermique est principalement due à la conduction solide et au transfert radiatif lorsque la pression tend vers zéro. On peut voir que le transfert thermique gazeux contribue de manière conséquente dans le transfert thermique total à pression atmosphérique alors que la somme de la conduction solide et du rayonnement est inférieure à 7 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, soit moins de 30 %. On observe que la conductivité thermique des lits granulaires diminue avec la pression, avec un point d'inflexion vers 20 mbar. Tant que $p > 20$ mbar, la conductivité thermique décroît doucement, puis elle chute soudainement pour des pressions plus petites que 20 mbar. On peut expliquer ce phénomène par la théorie cinétique des gaz. Le libre parcours moyen des molécules d'air augmente au fur et à mesure que la pression diminue, donc le transfert de chaleur via les molécules d'air va être restreint d'abord par les mésopores des granules, puis par les macropores intergranulaires. Ainsi la chute de conductivité thermique entre 1000 mbar et 20 mbar est causée par la présence des mésopores, alors que la chute de conductivité thermique en dessous de 20 mbar est due aux pores intergranulaires.

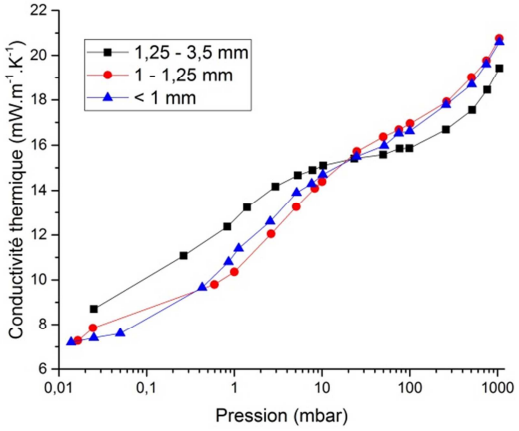


Figure II.3-27: Conductivité thermique d'un lit granulaire d'aérogel de silice en fonction de la pression, pour différentes granulométries

Les raisons évoquées ci-dessous permettent de justifier l'allure des courbes en dessous du point d'inflexion. En effet, une granulométrie plus grande a pour conséquences une taille de pores intergranulaire plus importante. Il faut donc descendre plus bas en pression pour supprimer la conduction gazeuse des macropores. Pour des pressions supérieures à 20 mbar, il est délicat d'expliquer l'inversion de tendance observée, *i.e.* les faibles granulométries ont une conductivité thermique plus importante. Wei et al. [34] ont conclu par le biais de simulations numériques qu'au-dessus du point d'inflexion les courbes sont superposées car elles ne dépendent que de la taille des mésopores à l'intérieur des granules. En réalité, la conductivité thermique dépend également de la densité du lit granulaire, du contact entre les granules et de la surface spécifique comme on peut l'observer sur les résultats expérimentaux de Bisson et al.[35] et Fricke et al. [36].

L'expérience a été répétée sur les *blankets* PET, NGF_6mm et NGF_24mm. On a tracé sur la Figure II.3-28, l'évolution de la conductivité thermique de ces *blankets* avec la pression. Les courbes sont très similaires à celles des lits granulaires avec un point d'inflexion notable pour chaque type de blanket. Le même raisonnement que précédemment nous permet de déduire des informations sur la texture poreuse des matériaux étudiés. La présence d'un point d'inflexion vers 100 mbar indique la superposition de deux réseaux de pores de tailles différentes. La distribution poreuse est constituée d'un réseau de mésopores (dont l'influence sur la valeur de la conductivité thermique est notable entre 100 mbar entre 1 bar) et de macropores (dont l'influence est notable en dessous de 100 mbar) et qui sont en fait les fissures que l'on a pu observer en tomographie X. Les courbes en pointillé de la Figure II.3-28 représentent la conductivité thermique théorique du *blanket* sans aucune fissure d'après le modèle de Kaganer. On voit que la présence de fissures augmente sensiblement la valeur de la conductivité thermique des matériaux étudiés à pression ambiante.

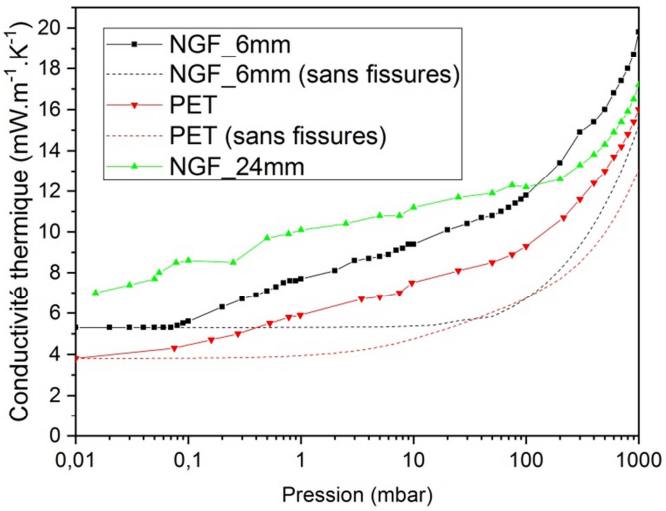


Figure II.3-28: Conductivité thermique des *blankets* en fonction de la pression. Les courbes théoriques sont tracées à partir du modèle de Kaganer. La masse volumique des NGF est approximativement 200 $kg \cdot m^{-3}$ et celle du PET 100 $kg \cdot m^{-3}$

La conductivité thermique des *blankets* NGF_6mm et PET mesurée à 0,01 mbar (vide primaire) nous donne la conductivité thermique de la phase solide (fibres + aérogel) et radiative. Ce n'est pas le cas pour le NGF_24mm dont la courbe ne converge pas nettement à 0,01 mbar, signifiant que sa taille moyenne de macropores est plus importante. La conductivité thermique mesurée sous vide primaire est de 5,3 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ pour le NGF_6mm et 3,8 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ pour le PET. En considérant que la phase aérogel est identique entre les *blankets* (la même chimie est utilisée pendant la synthèse), la différence de conductivité observée sous vide est uniquement due aux fibres (types de fibres, fraction volumique, tissage). Cette différence se répercute également à pression ambiante, pouvant expliquer en partie la différence de conductivité thermique entre NGF et PET.

La comparaison des courbes théoriques sans fissures avec les courbes expérimentales nous donne des informations sur la macroporosité des *blankets*. Une plus grande taille moyenne de macropores D fait glisser la courbe vers les basses pressions et une plus grande quantité de macropores n fait glisser la courbe vers les hautes conductivités. D'après la Figure II.3-28, on en déduit que $D_{\text{macro NGF_24mm}} > D_{\text{macro PET}} > D_{\text{macro NGF_6mm}}$ puisque la convergence de la courbe a lieu à moins basse pression, successivement, pour le NGF_6mm, le PET puis le NGF_24mm. On voit également que $n_{\text{macro NGF_6mm}} > n_{\text{macro PET}}$, puisque la conductivité à 1 bar du NGF_6mm est plus élevée de 3,8 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ que celle du PET, et que la différence de conduction solide et radiative n'explique que 1,5 $mW.^{-1} \cdot K^{-1}$ de cette différence. Pour le NGF_24mm, il est difficile de conclure puisque la convergence de la courbe a lieu au-dessous de 0,01 mbar, signifiant que l'air continue d'influencer le transfert thermique. Cependant, en supposant que le transfert thermique de la phase solide et radiative est identique pour les NGF_6mm et NGF_24mm, on en déduit que $n_{\text{macro NGF_6mm}} > n_{\text{macro NGF_24mm}}$.

vi Dégradations mécaniques des blankets

Avant la mise en fonction des *blankets* en tant qu'isolants thermiques, ceux-ci peuvent subir des dégradations mécaniques liées à leur manipulation, leur transport ou leur découpe. Les normes sur les isolants thermiques recommandent des valeurs de propriétés mécaniques (comportement en flexion, compression et traction) à respecter. Ces propriétés seront caractérisées dans la partie *Caractérisation Mécanique* dédiée. Le paragraphe présent a pour but d'étudier la variation de conductivité thermique du *blanket* induite par une dégradation mécanique définie.

Initialement, on mesure la conductivité thermique des *blankets* par microfluxmètre pour définir une valeur de référence avant sollicitation mécanique. On considère ensuite deux sollicitations mécaniques : une en compression et une en flexion trois points. La compression est effectuée sur le matériau jusqu'à obtenir 50 % de déformation et la flexion est effectuée jusqu'à dépasser la résistance en flexion du matériau. Après dégradations mécaniques, les conductivités thermiques des *blankets* sont directement mesurées dans les mêmes conditions qu'auparavant, à l'aide du microfluxmètre.

Le Tableau II.3-11 montre les résultats de mesure de conductivité thermique des *blankets* avant et après sollicitations mécaniques. Au moins 5 échantillons différents ont fait l'objet de mesure pour chaque valeur.

Échantillon	**Conductivité thermique ($mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$)**		
	État initial	**Après compression** (1)/(2)*	**Après Flexion**
NGF_6mm	18	16,2 / 18	19,6
NGF_12mm	15,4	14,5 /15.3	17,6

Tableau II.3-11: Conductivité thermique mesurée au microfluxmètre des *blankets* NGF_6mm et NGF_12mm après sollicitations mécaniques.

*(1) est la mesure réalisée immédiatement après la compression, le matériau a retrouvé 90 % de son épaisseur initiale (avant relaxation).

(2) est la mesure réalisée une semaine après la compression, le matériau a retrouvé 100 % de son épaisseur initiale (après relaxation).

Les résultats ci-dessus nous indiquent que la compression du matériau a tendance à faire baisser sa conductivité thermique effective. La compression appliquée ne semble pas détériorer le matériau (notamment la phase aérogel), mais elle referme les fissures entre les fibres et l'aérogel, ce qui conduit à une réduction du transfert thermique gazeux. Lorsque l'on effectue la mesure (1), le matériau n'a pas eu le temps de se relaxer à 100 %, la conductivité thermique mesurée est donc plus faible. La mesure (2) est identique à (1) avec une semaine d'intervalle et redonne la même valeur de conductivité thermique que celle d'avant compression. On observe par ailleurs que le matériau retrouve 100 % de son épaisseur initiale et a donc eu le temps de

se relaxer totalement. On en conclut que la compression appliquée n'a pas détérioré les performances thermiques des *blankets* NGF.

La flexion trois points des *blankets* cause une dégradation irréversible observée d'un point de vue thermique car on observe une augmentation de 10-15 % de la conductivité thermique. Les surfaces de contact entre les particules de silice étant très faibles, une contrainte en flexion du matériau brise facilement le squelette de silice et des fissures peuvent se propager à travers tout le *blanket*. En faisant cela, on augmente la taille de macropore moyenne de tout le *blanket* ce qui a pour effet d'augmenter le transfert thermique gazeux de manière irréversible.

Le détail du comportement mécanique des matériaux en compression et flexion sera détaillé dans la partie *Caractérisation Mécanique.*

II.3.5. Vieillissement hygrique

II.3.5.a Introduction

L'emploi des *blankets* aérogels en tant qu'isolant du bâtiment conduit inévitablement à un vieillissement thermohygrique du matériau qui peut potentiellement affecter sa microstructure et ses propriétés physiques. Sur le long terme, les températures rencontrées dans le bâtiment (-20 °C à 50 °C) n'ont que très peu d'effet sur les matériaux isolants à base d'aérogel de silice compte tenu de leur grande stabilité thermique (jusqu'à 450 °C) [37]. En revanche, peu de recherches ont été consacrées sur le vieillissement hygrique des *blankets* aérogels alors que l'humidité relative moyenne annuelle peut atteindre 80 % dans certaines villes européennes.

Le comportement hygrique des aérogels de silice dépend de la chimie de surface et de la microstructure du matériau.

La surface des aérogels de silice est constituée de trois groupements récurrents :

- les groupements siloxanes Si-O-Si issus de la condensation des groupements silanols.
- les groupements silanols Si-OH résiduels n'ayant pas réagi lors de l'étape de condensation.
- les groupements alkyles ou alcoxydes de la fonction hydrophobante

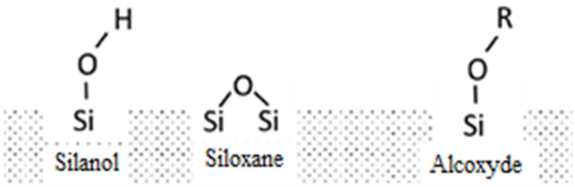


Figure II.3-29 : Groupes fonctionnels en surface d'un aérogel de silice

L'adsorption d'eau par ces groupements peut se faire soit par physisorption (Force de Van Der Walls ou liaison hydrogène) soit par chimisorption (création de liaisons covalentes ou ioniques). L'hydrophobicité d'un groupement se définit à partir de l'énergie de dissociation de liaison entre l'eau et le groupement considéré. Les surfaces hydrophiles ont par définition une énergie

de liaison avec l'eau inférieure à 44 kJ · mol^{-1} (enthalpie de vaporisation de l'eau) et les surfaces hydrophobes ont une énergie de liaison avec l'eau supérieure à 44 kJ · mol^{-1}.

Les premières études de vieillissement hygrique ont été effectuées par Bonsack [38] sur des poudres de silice non poreuses et ont montré que la physisorption des molécules d'eau avait lieu par liaison hydrogène sur les groupements Si-OH. Les énergies de surface des liaisons hydroxyle/eau dépendent cependant de la concentration des groupements OH et de la porosité des surfaces hydroxylées. Ainsi, il a été remarqué que l'eau est adsorbée plus facilement sur des paires de groupements Si-OH adjacents (énergie de liaison > 44 kJ · mol^{-1}) que sur des groupements Si-OH isolés (énergie de liaison = 16-21 kJ · mol^{-1}). Il en résulte alors des amas de molécules d'eau adsorbées les unes aux autres sur les groupements Si-OH vicinaux avant même que tous les sites Si-OH libres soient complets.

Les travaux de Morel et al. [39] sur différents types de silices nanométriques ont fourni la description la plus complète des phénomènes de vieillissement hygrique dans les matériaux à base de silice. Ces auteurs ont été les premiers à observer des changements microstructuraux dans le matériau tels que la baisse de surface spécifique du matériau et l'amélioration des propriétés mécaniques suite au vieillissement hygrique. Cette évolution microstructurale est attribuée à l'hydroxylation des ponts siloxanes conduisant au phénomène de dissolution-reprécipitation de la silice. Dans un phénomène proche de celui du mûrissement d'Ostwald, les particules de silice dans les zones à faible rayon de courbure convexe se dissolvent et se reprécipitent dans des zones à plus fort rayon de courbure convexe (zone de contact entre les particules de silice). Les travaux de Morel et al. ont également permis de quantifier la part d'eau adsorbée par physisorption et celle adsorbée par chimisorption grâce à des analyses thermogravimétriques.

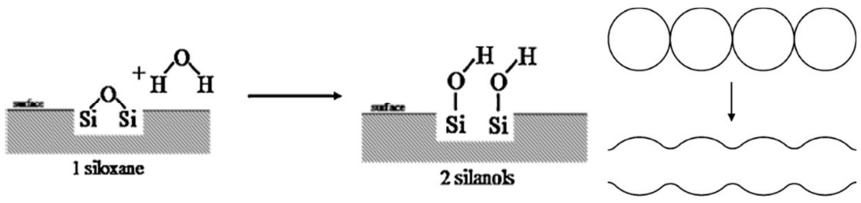


Figure II.3-30 : Réaction d'hydroxylation de la silice et effet de dissolution reprécipitation « lissant » l'aspect du squelette de silice.

Collins et al. [40] ont suivi le vieillissement de silices mésoporeuses sur 30 ans et observent une perte de surface spécifique ainsi qu'une augmentation de taille de pores moyenne. Balard et al. [41] ont étudié le vieillissement thermo-hygrique de silice pyrogénée (T = 25 °C, HR = 94 %) et ont observé que la physisorption d'eau a lieu lors des 40 premières heures (augmentation rapide de la masse) sur les groupes silanols libres, puis la chimisorption commence (augmentation de la densité de groupes silanols) et se poursuit pendant au moins deux mois.

Les premiers travaux de vieillissement hygrique de matériaux à base d'aérogel de silice proviennent de Ihara et al.[42], Alvey et al. [43] et Berardi et al.[44]. Ihara et al. ont étudié le vieillissement thermohygrique et UV de granules d'aérogel de silice. Leur matériau était soumis

à 300 cycles thermohygriques (T = 65 °C, HR = 100 %) pendant trois mois. Les résultats montrent une augmentation de la conductivité thermique de 10 % due uniquement au vieillissement hygrique. Alvey et al. et Berardi et al. ont travaillé sur le vieillissement thermohygrique de *blankets* aérogels et d'autres matériaux composites à base d'aérogel (plastique, plâtre) et ont montré qu'il induisait une augmentation de la conductivité thermique de ces matériaux.

Plus récemment, Chal et al. [45] ont mené une étude assez complète sur le vieillissement thermohygrique pendant un an(T = 70 °C, HR = 90 %) de granules d'aérogel de silice et de *blankets* aérogels de silice commercialisés. Ils ont étudié l'évolution des paramètres texturaux tels que la surface spécifique et la distribution de taille de pores, des paramètres hygriques tels que la sorption d'eau et l'hydrophobicité et également la conductivité thermique. Les résultats observés sont assez différents selon le type d'aérogel, mais une tendance générale se dégage : il n'y a que peu d'évolution de la microstructure lors des 96 premiers jours (surface spécifique et taille de pores), puis la surface spécifique commence à diminuer et la distribution de taille de pores glisse vers les grands diamètres. Au contraire, les critères caractérisant la chimie de surface (isotherme d'adsorption d'eau) montrent une évolution du domaine de Langmuir et de l'hydrophobicité uniquement lors des 96 premiers jours. Ils suggèrent alors un mécanisme de vieillissement en deux temps : Dans les premiers instants du vieillissement les molécules d'eau hydrolysent soit les groupements siloxanes et les groupements silanols libres, soit les groupements alkoxydes de la fonction hydrophobante. Suite à ce mécanisme de modification chimique de la surface, le phénomène de dissolution-reprécipitation gouverné par l'humidité relative conduit aux changements texturaux.

II.3.5.b Résultats

Des mesures de vieillissement hygrique des matériaux étuidiés ont été effectuées afin de caractériser le comportement des *blankets* lorsqu'ils sont soumis à une forte humidité pendant un long laps de temps. Cela permet de s'assurer des performances thermiques des *blankets* dans des cas où ils sont mis en place dans des régions climatiques à très fort taux d'humidité, ou lorsque l'excédent d'humidité ne peut être évacué rapidement.

Nous avons placé des échantillons de *blanket*s NGF, mousses, et granules aérogel dans une enceinte close dont l'humidité relative était maintenue constante à 98 % à l'aide d'une solution de K_2SO_4 saturée, et dont la température était de 20 °C. Connaissant la grande stabilité avec la température de ce type d'aérogel, le vieillissement thermique n'a pas été étudié.

Pendant un an, on a observé l'évolution de la conductivité thermique des *blankets* et mousses ainsi que la texture poreuse par mesure de la surface BET et de la distribution de taille de pores.

La Figure II.3-31 montre l'évolution de la conductivité thermique au cours du temps. Au 12 ème mois, les échantillons sont séchés pendant deux semaines à 70 °C et on mesure une dernière fois la conductivité thermique.

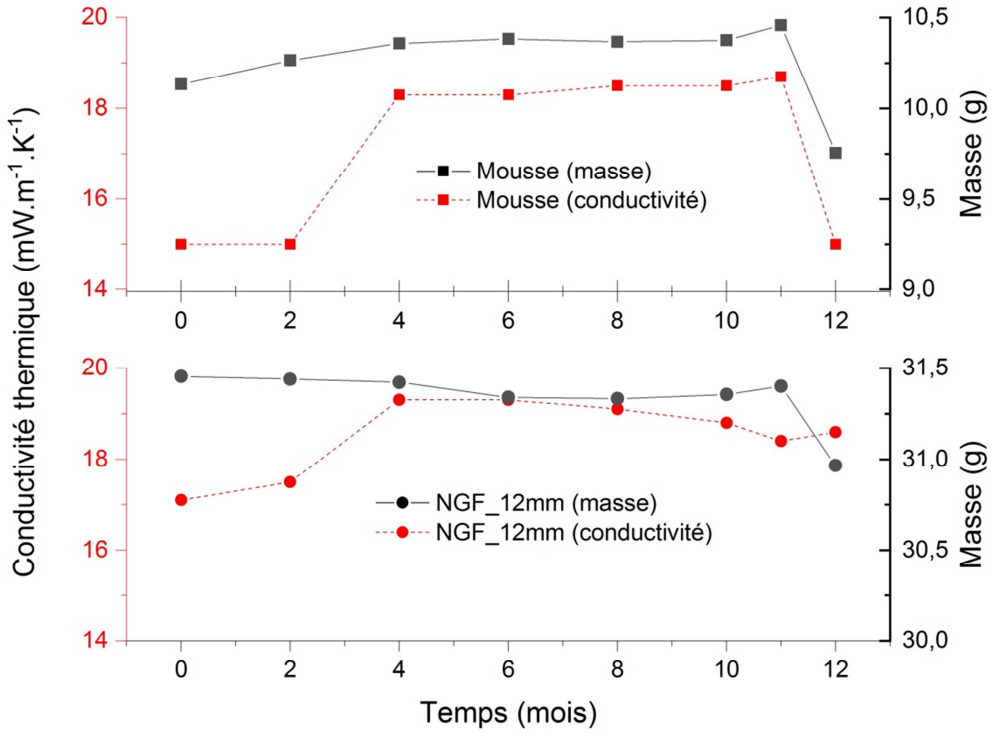


Figure II.3-31: Évolution de la conductivité thermique des *blankets* sous ambiance humide (HR = 98%). Au douzième mois, les échantillons sont séchés (T = 70 °C, HR = 10 %).

La conductivité thermique des échantillons augmente peu lors deux premiers mois, puis augmente soudainement entre le mois 2 et 4 pour se stabiliser autour de 18 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ pour les mousses, et 19 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ pour les NGF_12mm. Parallèlement, on suit la masse totale des échantillons et on voit que celle-ci reste à peu près constante jusqu'au séchage final. On observe néanmoins une légere diminution de la masse du blanket NGF_12mm au cours du temps (-0,4 % de masse) que l'on attribue aux incertitudes de mesures et à la méthode de mesures (les échantillons doivent être sorties de l'enceinte humide pour être caractérisés, ce qui modifie leur équilibre hygrique) Après séchage, on remarque que les mousses retrouvent leur conductivité thermique initiale mais ce n'est pas le cas du *blanket* NGF_12mm. Il semble que l'immersion en atmosphère humide pendant une longue durée ait irréversiblement dégradé les propriétés thermiques du *blanket* NGF_12mm.

Pour en savoir plus, nous avons fait subir le même traitement de vieillissement hygrique à la phase aérogel seule et nous avons suivi l'évolution de la surface spécifique et de la distribution de taille de pores afin de voir si l'on observe une modification de texture de la phase aérogel. La Figure II.3-32 montre les isothermes de sorption et les distributions de taille de pores de la phase aérogel. Trois cas de vieillissement hygrique sont étudiés : une mesure initiale sans vieillissement, une mesure après 6 mois de conditionnement, et une mesure après 12 mois de conditionnement.

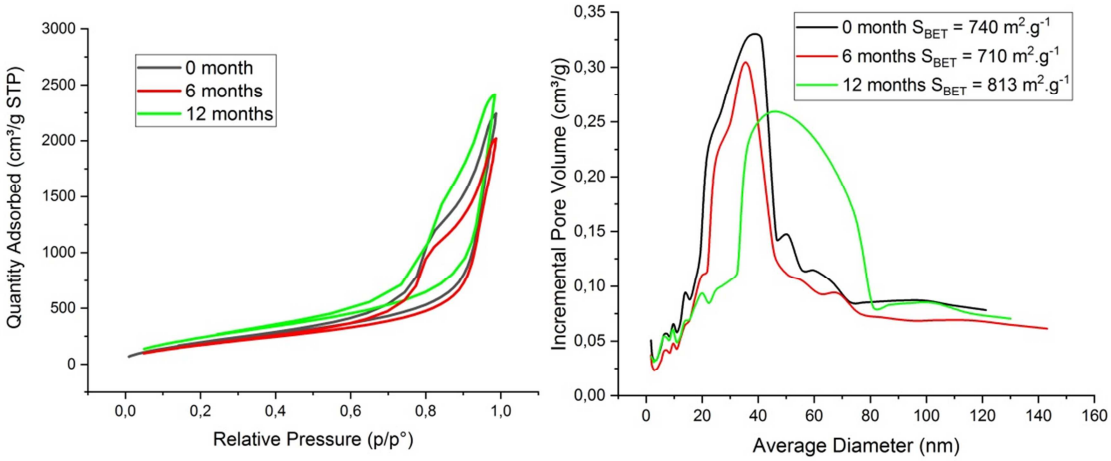


Figure II.3-32:Isotherme de sorption (gauche) et distribution de taille de pores (droite) de la phase aérogel de silice après vieillissement hygrique (conditionnement à 98 % d'humidité relative)

Il est difficile de conclure directement sur les isothermes de sorption, les allures des courbes semblent relativement proches. À partir de l'analyse de la branche d'adsorption par la méthode BJH, on en déduit la distribution de taille de pores de la phase aérogel pour les différents temps de vieillissement. Au cours des 6 premiers mois de vieillissement, très peu de changement est observé sur la distribution de taille de pores. Au 12^{e} mois de mesure, la distribution de taille de pores s'est élargie vers une plus grande mésoporosité. La taille de pores est centrée cette fois-ci sur 55 nm au lieu de 40 nm lors des deux points de mesures précédents. Néanmoins, on observe peu de changement sur les surfaces spécifiques associées aux distributions de taille de pores. Les variations de surface spécifique observées sont peu significatives compte tenu de l'erreur de mesure possible sur la masse de l'échantillon. En effet, l'aérogel de silice est tellement léger que les mesures sont sensibles à l'électricité statique. Dans ce cas, la précision de mesure de surface spécifique est donnée avec une incertitude de 50 $m^2.g^{-1}$.

En combinant cet effet du vieillissement hygrique sur la texture avec l'effet sur la conductivité thermique, on peut en conclure que l'exposition de l'aérogel de silice à une forte humidité affecte de manière irréversible la mésoporosité de l'aérogel. Cette mésoporosité s'élargit vers les grandes tailles de pore, réduisant par la même occasion l'effet de raréfaction de l'air dans le réseau poreux. Cela a pour conséquence d'augmenter légèrement la conductivité thermique effective du matériau aérogel. Ces essais constituent une première étape de caractérisation sur le lien entre le vieillissement hygrique du matériau et ses propriétés texturales et thermiques. Ils sont relativement longs à effectuer et la littérature sur cesujet est très peu fournie. En s'appuyant sur les travaux de la littérature mentionnés en introduction, nos conclusions sont les suivantes :

- Les propriétés thermiques et texturales du matériau évoluent à partir des mois 4-6 du vieillissement hygrique. Cela suggère un premier mécanisme qui apparaît durant les premiers instants du vieillissement, permettant d'amorcer les futurs changements de propriétés physiques du matériau.

- D'après la littérature, nous attribuons ce premier mécanisme à l'hydrolyse des groupements siloxanes. Lorsqu'un groupement siloxane est hydroxylé, il en résulte un groupement silanol vicinal hydrophile sur lequel les molécules d'eau peuvent s'adsorber plus facilement que sur les groupements silanols seuls. En revanche, aucune information n'a été trouvée dans la littérature sur l'hydrolyse potentielle de l'agent hydrophobant (HDMS dans notre cas)
- L'augmentation moyenne de la taille de pores et de la conductivité thermique laisse penser que le mécanisme de dissolution-reprécipitation est à l'origine de ces changements après les premiers mois de vieillissement. Le mécanisme de dissolution-reprécipitation fait migrer la matière vers les zones de contact entre nanoparticules ayant pour effet de lisser le squelette solide. Cette diffusion de matière implique une suppression des pores les plus petits et une augmentation du libre parcours moyen des phonons dans le squelette (Figure II.3-33). Il en résulte alors une augmentation de la conductivité thermique solide et dans une moindre mesure, de la conductivité thermique gazeuse, comme l'illustre la Figure II.3-31.

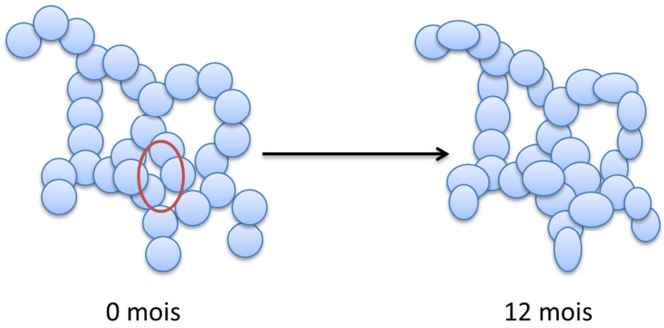


Figure II.3-33 : Illustration du vieillissement microstructural de l'aérogel de silice. On peut voir que les pores les plus petits disparaissent (cercle rouge) et que les surfaces de contact inter-particule augmentent suite aux mécanismes de dissolution-reprécipitation.

II.3.6. Caractérisation mécanique

Des essais de compression, flexion et traction ont été menés sur les *blankets* NGF sur une machine traction-compression ZwickiLine Z2.5. Ces essais permettent de déduire les modules mécaniques des matériaux étudiés et de les comparer avec les recommandations ACERMI ou les normes AFNOR liées à l'isolation thermique du bâtiment.

II.3.6.a Compression uniaxiale

Les essais de compression sont effectués sur une dizaine d'échantillons NGF_6mm et NGF_20mm sur la machine ZwickiLine Z2.5. Les échantillons sont de forme cylindrique avec un diamètre de 40 mm et une épaisseur correspondant à celle du NGF (Figure II.3-34). Le cycle de compression est composé de deux phases : une compression uniaxiale de vitesse $3\ mm \cdot min^{-1}$ jusqu'à obtenir une élongation de 3 mm, puis on mesure le retour élastique à la même vitesse. La Figure II.3-35 donne les courbes de compression représentatives des échantillons NGF_6mm et NGF_20mm.

Figure II.3-34 : Essai de compression sur un blanket NGF

Le module de compression K (Mpa) et la contrainte à 10 % de déformation sont calculés sur la partie élastique de la courbe (linéaire), la compressibilité (mm) est définie comme la perte d'épaisseur entre 0,01 MPa et 0,04 MPa et le retour élastique est mesuré sur la partie descendante de la courbe. Pour ce dernier, on regarde à quel point l'échantillon retrouve son épaisseur initiale. Les résultats de ces essais en compression sont présentés dans le Tableau II.3-12.

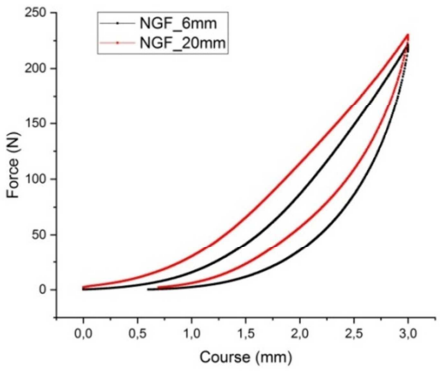


Figure II.3-35 : Courbes de compression uniaxiale représentative du comportement des NGF_6mm et NGF_20 mm

Échantillons (nombre)	Retour élastique Re	Contrainte à 10 % σ_{10} [kPa]	Module de compression [MPa]	Compressibilité c [mm]
NGF_6mm (6)	91 % ±1,2%	72 ±7,5	0,68 ±0,08	0,58 ±0,04
NGF_20mm (4)	91 % ±1,9%	57 ±16	0,66 ±0,.06	0,82 ±0,27

Tableau II.3-12 ; Propriétés mécaniques en compression des *blankets* NGF_6mm et NGF_20mm

Le retour élastique observé est très bon, le matériau retrouve 90 % de son épaisseur initiale immédiatement après la compression et 99 % une semaine après. Les mesures de contrainte à 10 % de déformation permettent de déclarer l'isolant au niveau CS(10/40), ce qui signifie qu'aucun résultat d'essai de contrainte en compression à 10 % de déformation n'est plus faible que 40 kPa. Enfin, la compressibilité du matériau respecte la certification ACERMI I3 qui stipule que la compressibilité du matériau isolant est inférieure à 3 mm.

II.3.6.b Flexion 3 points

Les essais de flexion 3 points sont effectués sur une dizaine d'échantillons NGF_6mm et NGF_20mm sur la machine ZwickiLine Z2.5. Les normes AFNOR [23] et ATSM [24] recommandent de maximiser la distance entre les deux points d'appui avec un rapport minimum de 1/6 entre l'épaisseur de l'échantillon et la distance entre les cylindres d'appuis. Nous avons choisi une distance d'appui de 110 mm pour le NGF_6mm et 250 mm pour le NGF_20 mm, ce qui permet de respecter la norme tout en ayant des efforts suffisamment grands pour être mesurables par le capteur.

Les essais en flexion sont effectués à une vitesse de 10 $mm \cdot min^{-1}$. Les courbes en flexion représentatives des deux matériaux sont représentées en Figure II.3-36. Premièrement, on détermine la flexion du matériau sous son propre poids conformément à la certification ACERMI. On déduit ensuite de la courbe le module en flexion à partir de la zone élastique (linéaire) et la résistance à la flexion à partir de la force maximale appliquée lors de l'essai. Les résultats d'essais sont détaillés dans le Tableau II.3-13.

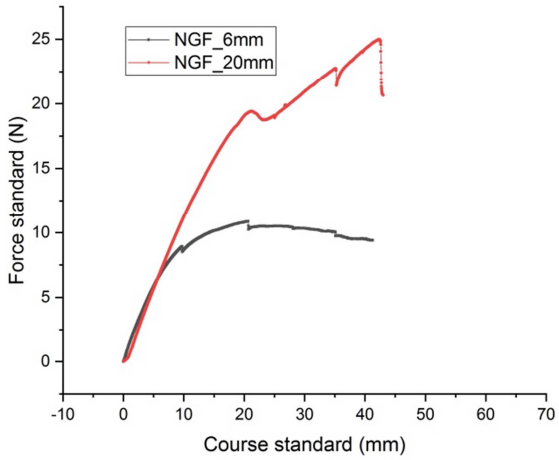


Figure II.3-36: Courbes de mesure de flexion 3 points des *blankets* NGF

Échantillons (nombre)	Flexion sous son propre poids Fp [mm]	Module de flexion E_f [MPa]	Résistance en flexion σ_f[kPa]
NGF_6mm (4)	< 0,3 mm	17,2 $\pm 1,6$	560 ± 84
NGF_20mm (4)	< 1 mm	11,5 ± 2	490 ± 84

Tableau II.3-13: Résultats d'essais en flexion 3 points des *blankets* NGF

La flexion sous leur propre poids des NGF_6mm et NGF_20mm est très faible, à peine mesurable. Les *blankets* étant macroscopiquement rigides, elles ne fléchissent quasiment pas sous leur propre poids. Les *blankets* NGF respectent ainsi la certification ACERMI L2, qui préconise une flèche en flexion de l'isolation sous son propre poids inférieure à 120 mm. Les résultats de résistance à la flexion permettent de déclarer l'isolant comme étant de niveau BS400, soit qu'aucune mesure de résistance à la flexion n'est au-dessous de 400 kPa, ce qui est une amélioration considérable par rapport au comportement en flexion d'un aérogel natif (résistance à la flexion de 15 kPa).

On remarque quelques irrégularités sur les courbes de flexion qui sont dues aux moments ou des parties entières du réseau de silice se brisent (légère chute de force). Les essais ont été prolongés jusqu'à obtenir un matériau fléchi à 90° et on observe que les fibres continuent de supporter les efforts sans qu'aucun *blanket* se rompe. Après la mesure, le *blanket* retrouve presque sa forme initiale comme on peut le voir en Figure II.3-37, ce qui confirme l'excellent retour élastique en flexion des matériaux.

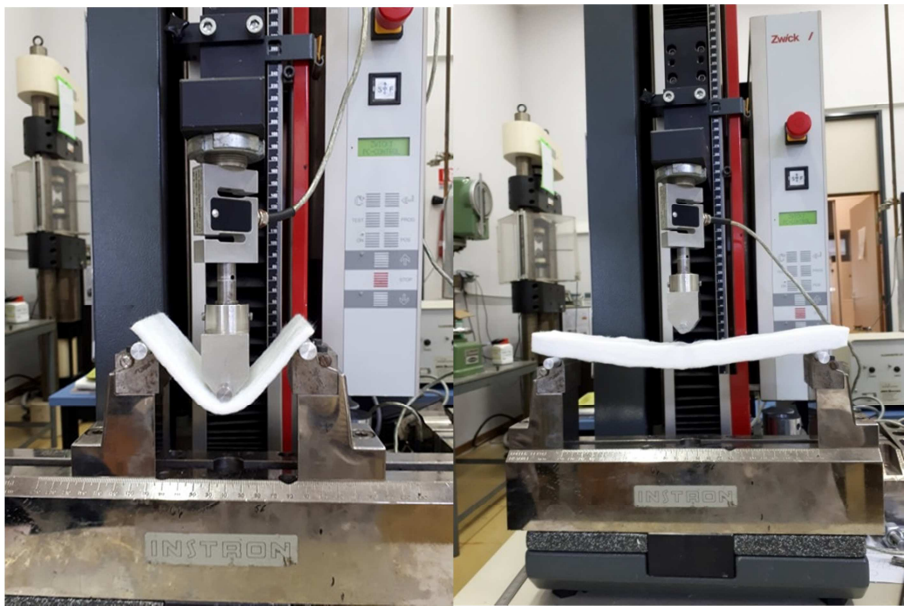


Figure II.3-37: Flexion 3 points de *blankets* NGF: (gauche) Échantillon de NGF_6mm fléchi à 90°, sans rupture ; (droite) Échantillon de NGF_20mm après flexion, l'échantillon revient à sa position initiale à 5° près.

II.3.6.c Résistance à la traction perpendiculaire aux faces

Les essais en traction sont réalisés dans le cadre de la norme NF EN 1607 [25]. Les échantillons sont initialement collés entre deux plaques métalliques avec de la colle polyuréthane. L'essai de traction est effectué en tirant les plaques métalliques avec la machine ZwickiLine Z2.5 à une vitesse constante de 10 $mm \cdot min^{-1}$. Les courbes force – déplacement sont tracées ci-dessous :

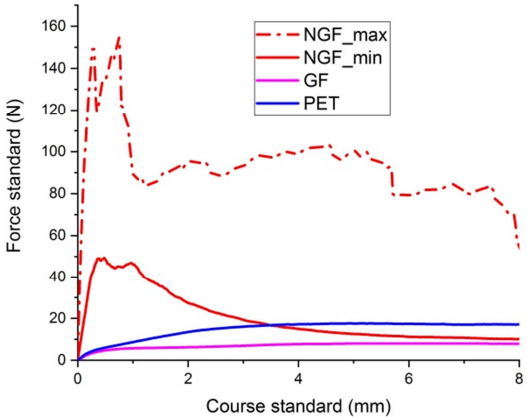


Figure II.3-38:Courbe Force-déplacement des *blankets* NGF_20mm, GF et PET lors des essais en tractions perpendiculaires aux faces. NGF_min représente le NGF ayant la plus faible résistance à la traction et NGF_max le NGF ayant la plus grande résistance à la traction.

La Figure II.3-38 montre que les *blankets* NGF ont une meilleure résistance à la traction que le *blanket* PET ou GF, même s'il existe une forte disparité entre les échantillons. La force maximale de traction atteint 155 N pour le NGF, 17 N pour le PET et 7 N pour le GF. La meilleure résistance mécanique du NGF provient de ses fibres aiguilletées qui assurent une meilleure cohésion de l'isolant dans le sens transverse. On observe que la rupture du NGF a lieu rapidement et subitement alors que le GF et le PET ont une rupture lente et progressive. On peut voir sur la figure ci-dessous la rupture de chacun des *blankets* lors de la traction.

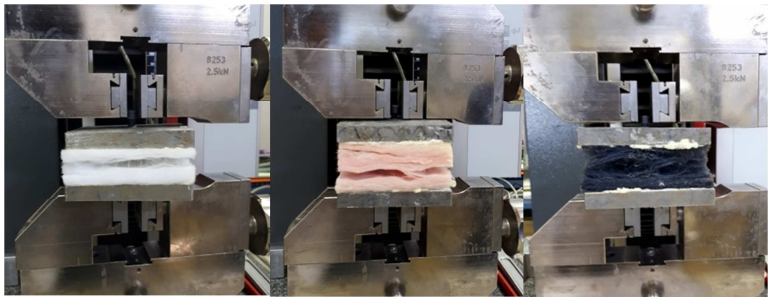


Figure II.3-39 : Essais de traction perpendiculaire aux faces de l'isolant au moment de la rupture

À partir des résultats de traction, on calcule la résistance à la rupture des échantillons connaissant la surface collée des échantillons. Les résultats de résistance à la traction et d'allongement à la rupture sont donnés dans le tableau ci-dessous :

Blanket	Résistance à la traction (kPa)	Allongement à la rupture
NGF_20mm	9-28	2,8 %
GF	1	13 %
PET	3	13 %

Tableau II.3-14 : Propriétés mécaniques en cohésions des *blankets*

Les propriétés mécaniques bien trop faibles des *blankets* GF et PET ont participé à la mise à l'écart de ces *blankets* au profit des NGF, bien plus résistants d'un point de vue mécanique. Cependant, même si l'amélioration mécanique des NGF est considérable, elle ne permet pas de respecter le critère ISOLE L3 qui nécessite une résistance à la traction supérieure à 50 kPa.

II.4 Conclusions sur les caractérisations physiques

Les résultats de caractérisation présentés décrivent les principales propriétés physiques du matériau à la sortie du moule. L'analyse des liaisons chimiques de la phase aérogel a permis de prouver l'existence de groupements hydrophobes en surface du matériau et de valider l'étape de modification de surface lors de la synthèse. Le caractère hydrophobe des *blankets* s'est vérifié lors des caractérisations hygriques de reprise d'eau, d'angle de contact et d'absorption liquide. La conductivité thermique des *blankets* en conditions ambiantes est bien plus basse que celle des isolants conventionnels (d'un facteur 2 à 3). Une étude plus poussée sur la conductivité thermique sous différents environnements a été menée. On en déduit que l'humidité affecte légèrement la conductivité thermique effective des *blankets* (+30 à 40 % d'augmentation à 90 % HR). Une étude de sensibilité au mode de séchage a montré que les propriétés thermiques des *blankets* séchés par voie supercritique et par voie électromagnétique sont très proches (moins de 5 % d'écart sur la conductivité thermique). L'étude de la conductivité thermique des *blankets* en fonction de la pression ouvre la voie à des applications sous vide et donne des informations sur la texture du matériau et sur les transferts thermiques en leur sein. On estime à plus de 75 % la contribution de l'air dans le transfert de chaleur en conditions ambiantes. Sous vide les *blankets* ont des conductivités thermiques aussi basses que 3,8 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, proches de celles des panneaux d'isolation sous vide PIV. L'analyse de la courbe conductivité/pression ainsi que l'analyse par sorption d'azote décrit la texture du matériau poreux. Celui-ci est composé d'un réseau de pores bimodal constitué des mésopores de la phase aérogel et des macropores (surtout des fissures à l'échelle macroscopique). Une première étude de vieillissement hygrique a été menée sur les performances thermiques et sur la texture du matériau. Les résultats montrent qu'à long terme, l'excès d'humidité dégrade légèrement la conductivité thermique de certains *blankets* ainsi que les propriétés texturales du réseau de pores.

Les caractérisations mécaniques ont montré que les matériaux étudiés disposent de bonnes propriétés mécaniques grâce aux fibres qui reprennent les efforts en flexion et en traction. Les *blankets* aérogels étudiés ne risquent alors pas de se dégrader facilement lors de leur manutention.

L'objectif premier de la production d'un isolant *blanket* aérogel était la fabrication d'un super-isolant tirant profit des propriétés thermiques exceptionnelles de l'aérogel de silice, tout en ayant des propriétés mécaniques acceptables grâce à l'incorporation de fibres ou de mousse. Le Tableau II.4-1 compare les propriétés thermiques et mécaniques des *blankets* aérogels de silice étudiés dans le cadre de cette thèse avec celles des *blankets* déjà commercialisés ainsi qu'avec celles de l'aérogel de silice natif.

Matériau	**Type de séchage**	**Conductivité thermique ($mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) T = 23 °C, HR = 50 %**	**Résistance flexion (MPa)**	**Résistance en compression (10 % déformation) (MPa)**
Aérogel de silice natif	Supercritique	15	0,050	0,1
Blankets produits dans le cadre de la thèse	Électromagnétique	16-18	0,560	0,07
Spaceloft (Aspen)	Supercritique	15	NA	0,08
Thermal Wrap (Cabot)	Supercritique/Ambiant	23	NA	NA
Airloy X50 (Aerogel Technologies)	Ambiant	18-30	> 10	> 30

Tableau II.4-1: Propriétés thermiques et mécaniques des *blankets* étudiés par rapport aux principaux matériaux composites à base d'aérogel du marché

On voit que la fabrication des *blankets* étudiés implique une légère hausse de conductivité thermique par rapport à l'aérogel natif. En contrepartie, l'utilisation de fibres permet d'améliorer les propriétés mécaniques. Le matériau devient ductile et ne se rompt pas brutalement en flexion ou en compression comme c'est le cas pour l'aérogel natif. La résistance à la compression (10 % de déformation) est légèrement plus faible en raison de la présence de fibres et de macrofissures qui rendent le matériau moins rigide en compression.

Les principaux acteurs des *blankets* aérogels, Cabot et Aspen, proposent des isolants similaires à ceux étudiés avec chacun sa spécificité. Aspen garde le traditionnel séchage supercritique tandis que Cabot combine un séchage supercritique et un séchage ambiant. Les *blankets* étudiés dans le cadre de la thèse se démarquent par le séchage électromagnétique dont les atouts ont déjà été exposés en début de chapitre. L'utilisation d'un mat aiguilleté permet également d'améliorer considérablement la résistance à la traction et au délaminage, malheureusement aucun résultat d'essai des autres produits du marché n'a pu être trouvé.

Concernant uniquement les *blankets* étudiés, on voit que la mousse aérogel est la plus prometteuse d'un point de vue thermique, cependant le matériau a rapidement été mis de côté en raison de sa dégradation structurelle sous forte humidité. Les *blankets* GF et PET ont eux aussi de bonnes propriétés thermiques, mais ont finalement été écartés car certaines de leurs

autres propriétés n'étaient pas adaptées pour leur emploi en tant qu'isolant. Le *blanket* GF a une très faible résistance au délaminage tandis que le *blanket* PET présente une faible résistance au feu, une émission de COV plus importante, une faible adhésion lors du collage et un découpage difficile (caractérisations faites par les partenaires du projet).

Les résultats de caractérisations de ces premiers *blankets* ont conduit à la fabrication du *blanket* NGF, considéré comme la version finale du produit. L'utilisation d'un mat de fibres aiguilleté et d'un mat plus dense a permis d'améliorer considérablement les propriétés mécaniques de l'isolant et d'éviter la délamination. Le *blanket* NGF garde tous les avantages des *blankets* précédents, à savoir une faible conductivité thermique, un comportement hydrophobe, un comportement thermique et mécanique stable dans le temps, une bonne résistance au feu (classe A) et pas d'émission de COV ou de fumées.

Par la suite, l'utilisation d'un mat de fibres PET fabriqué à partir de bouteilles plastiques a lancé le développement d'un *blanket* plus écologique : le *blanket* PET recyclé.

En se basant sur les propriétés des *blankets* obtenus, on peut utiliser la certification ACERMI pour déterminer l'aptitude à l'emploi des matériaux étudiés. Le Tableau II.4-2 montre les propriétés ISOLE des *blankets* étudiés en accord avec la classification établie lors du chapitre bibliographique (Tableau I.3-1, page 20) et des exigences d'usage selon le type d'isolation envisagé.

	I	**S**	**O**	**L**	**E**
Blankets (GF,NGF,PET,PET recyclé)	3	2	2	2	1
Classe ISOLE nécessaire pour emploi					
Isolation intérieure de parois lourdes					
Isolation derrière cloison de doublage	1	1	1-2	2	1-4
Isolant contrecollé en usine à une ou deux plaques de plâtre	1	2	2	3	2-3
Isolation extérieure de parois lourdes					
Isolant inséré dans un bardage rapporté, bardage traditionnel	1	1	2	2	1
Isolant inséré dans un revêtement attaché en pierre mince	1	1	2	2	1
Isolation incorporée ou position intermédiaire					
Isolant inséré dans un double mur	1	1	2	2	1-4
Isolant entre ossatures (bois, métal, béton) et parois légères	1	1-4	1-2	1-2	1-4
Isolant inséré dans un panneau préfabriqué en béton avec entretoises	2	1	2	3	2

Tableau II.4-2 : Modalités d'emploi des *blankets* aérogels étudiés selon la certification ACERMI

D'après le Tableau II.4-2, les *blankets* aérogels peuvent être utilisés pour une isolation thermique intérieure, extérieure ou en position intermédiaire. Les faibles propriétés de résistance à la traction ainsi que la perméance élevée limitent néanmoins certaines applications.

Dans le chapitre suivant, nous nous intéresserons à la modélisation du transfert thermique dans le *blanket* aérogel de silice. De nombreux résultats de caractérisation du chapitre présent seront utilisés comme données d'entrées pour les modèles investigués.

REFERENCES

[1] P. A. Bonnardel and S. Chausson, 'Procede de fabrication d'aerogels par chauffage dielectrique', Sep-2015.

[2] G. Wei, Y. Liu, X. Zhang, and X. Du, 'Radiative heat transfer study on silica aerogel and its composite insulation materials', *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 362, pp. 231–236, Feb. 2013.

[3] K. S. Sing, 'Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity (Recommendations 1984)', *Pure Appl. Chem.*, vol. 57, no. 4, pp. 603–619, 1985.

[4] A. Ayral, J. Phalippou, and T. Woignier, 'Skeletal density of silica aerogels determined by helium pycnometry', *J. Mater. Sci.*, vol. 27, no. 5, pp. 1166–1170, 1992.

[5] G. Reichenauer and G. W. Scherer, 'Effects upon Nitrogen Sorption Analysis in Aerogels', *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 236, no. 2, pp. 385–386, Apr. 2001.

[6] G.Reichenauer and G.W. Scherer, 'Extracting the pore size distribution of compliant materials from nitrogen adsorption', *Colloids Surf. Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 187, pp. 41–50, 2001.

[7] S. Brunauer, P. H. Emmett, and E. Teller, 'Adsorption of gases in multimolecular layers', *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 60, no. 2, pp. 309–319, 1938.

[8] F. Rouquerol, J. Rouquerol, I. Beurroies, P. Llewellyn, and R. Denoyel, *Texture des matériaux divisés - Aire spécifique des matériaux pulvérulents ou nanoporeux*, Ed. Techniques Ingénieur. 2017.

[9] E. P. Barrett, L. G. Joyner, and P. P. Halenda, 'The determination of pore volume and area distributions in porous substances. I. Computations from nitrogen isotherms', *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 73, no. 1, pp. 373–380, 1951.

[10] G.Reichenauer and G.W. Scherer, 'Nitrogen sorption in aerogels', *J. Non-Cryst. Solid*, vol. 285, pp. 167–174, 2001.

[11] J. C. Groen, L. A. . Peffer, and J. Pérez-Ramírez, 'Pore size determination in modified micro- and mesoporous materials. Pitfalls and limitations in gas adsorption data analysis', *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 60, no. 1–3, pp. 1–17, Jun. 2003.

[12] Z. Yuan, J. Wang, Z. Zhang, T. Chen, and H. Li, 'Vanadium-and chromium-containing mesoporous MCM-41 molecular sieves with hierarchical structure', *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 43, no. 2, pp. 227–236, 2001.

[13] Z. Yuan, J. Wang, H. Li, and Z. Chang, 'Synthesis of a novel aluminosilicate with bimodal mesopore distribution', *Chin. Chem. Lett.*, vol. 8, no. 10, pp. 927–930, 1997.

[14] A. Keshavaraja, V. Ramaswamy, H. Soni, A. Ramaswamy, and P. Ratnasamy, 'Synthesis, characterization, and catalytic properties of micro-mesoporous, amorphous titanosilicate catalysts', *J. Catal.*, vol. 157, no. 2, pp. 501–511, 1995.

[15] G. Colón, M. Hidalgo, and J. Navıo, 'A novel preparation of high surface area TiO2 nanoparticles from alkoxide precursor and using active carbon as additive', *Catal. Today*, vol. 76, no. 2–4, pp. 91–101, 2002.

[16] V. Parvulescu *et al.*, 'Preparation and characterisation of mesoporous zirconium oxide', *Appl. Catal. Gen.*, vol. 214, no. 2, pp. 273–287, 2001.

[17] AFNOR, 'NF EN 12667 - Détermination de la résistance thermique par la méthode de la plaque chaude gardée et la méthode fluxmètrique - Produits de haute et moyenne résistance thermique', 2001.

[18] AFNOR, 'NF EN ISO 11357-1 Analyse calorimétrique différentielle (DSC) Partie 1 : Pr incipes généraux'. AFNOR, 2009.

[19] 'EN ISO 12571 - Hygrothermal performance of building materials and products — Determination of hygroscopic sorption properties'. AFNOR, 2013.

[20] 'EN 828 -Adhesives — Wettability — Determination by measurement of contact angle and surface free energy of solid surface'. AFNOR, 2013.

[21] 'EN ISO 12086 - Thermal insulating products for building applications — Determination of water vapour transmission properties'. AFNOR, 2013.

[22] 'EN 826 (2013): Thermal insulating products for building applications - Determination of compression behaviour.' AFNOR, 2013.

[23] 'EN 12089 - Produits isolants thermiques destinés aux applications du bâtiment - Détermination du comportement en flexion'. AFNOR, 2013.

[24] D. ASTM, '790-03', *Stand. Test Methods Flexural Prop. Unreinforced Reinf. Plast. Electr. Insul. Mater.*, vol. 11, 2003.

[25] 'EN 1607 (2013): Thermal insulating products for building applications - Determination of tensile strength perpendicular to faces.' AFNOR, 2013.

[26] 'EN 13162 Thermal insulation products for buildings - Factory made mineral wool (MW) products – Specification'. AFNOR, 2015.

[27] 'EN 13500 (2003): Thermal insulation products for buildings - External thermal insulation composite systems (ETICS) based on mineral wool'. AFNOR, 2003.

[28] © ACERMI, 'Les référentiels ACERMI', *ACERMI*. [Online]. Available: http://www.acermi.com/documents-reference/referentiels-acermi/. [Accessed: 12-Dec-2017].

[29] A. C. Pierre and A. Rigacci, 'SiO2 aerogels', in *Aerogels handbook*, Springer, 2011, pp. 21–45.

[30] G. Markevicius, R. Ladj, P. Niemeyer, T. Budtova, and A. Rigacci, 'Ambient-dried thermal superinsulating monolithic silica-based aerogels with short cellulosic fibers', *J. Mater. Sci.*, vol. 52, no. 4, pp. 2210–2221, Feb. 2017.

[31] A. M. Anderson and M. K. Carroll, 'Hydrophobic silica aerogels: review of synthesis, properties and applications', in *Aerogels Handbook*, Springer, 2011, pp. 47–77.

[32] A. Hoseini and M. Bahrami, 'Effects of humidity on thermal performance of aerogel insulation blankets', *J. Build. Eng.*, vol. 13, pp. 107–115, Sep. 2017.

[33] AFNOR, 'Produits isolants thermiques pour le bâtiment — Produits manufacturés en laine minérale (MW) — Spécification', 2015.

[34] G. Wei, Y. Zhang, C. Xu, X. Du, and Y. Yang, 'A thermal conductivity study of double-pore distributed powdered silica aerogels', *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 108, pp. 1297–1304, May 2017.

[35] A. Bisson, A. Rigacci, D. Lecomte, and P. Achard, 'Effective thermal conductivity of divided silica xerogel beds', *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 350, pp. 379–384, Dec. 2004.

[36] J. Fricke, E. Hümmer, H.-J. Morper, and P. Scheuerpflug, 'Thermal properties of silica aerogels', *J. Phys. Colloq.*, vol. 24, no. C4, pp. C4-87-C4-97, Apr. 1989.

[37] R. Saliger, T. Heinrich, T. Gleissner, and J. Fricke, 'Sintering behaviour of alumina-modified silica aerogels', *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 186, pp. 113–117, Jun. 1995.

[38] J. P. Bonsack, 'Effect of aging on surface properties of silica powders produced by plasma-arc vaporization', *Powder Technol.*, vol. 15, no. 1, pp. 53–62, Sep. 1976.

[39] B. Morel, 'Vieillissement thermohydrique de silices nanométriques', PhD Thesis, Tours, 2008.

[40] K. E. Collins, M. C. Gonçalves, R. B. Romero, R. F. Conz, V. R. de Camargo, and C. H. Collins, 'Low temperature ageing of silicas Gasil-I and TK800', *Appl. Surf. Sci.*, vol. 254, no. 13, pp. 4029–4035, Apr. 2008.

[41] H. Balard, J.-B. Donnet, H. Oulanti, T. Gottschalk-Gaudig, and H. Barthel, 'Study of aging of pyrogenic silicas by gravimetry and microcalorimetry', *Colloids Surf. Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 378, no. 1–3, pp. 38–43, Mar. 2011.

[42] T. Ihara, B. P. Jelle, T. Gao, and A. Gustavsen, 'Aerogel granule aging driven by moisture and solar radiation', *Energy Build.*, vol. 103, pp. 238–248, Sep. 2015.

[43] J. B. Alvey, J. Patel, and L. D. Stephenson, 'Experimental study on the effects of humidity and temperature on aerogel composite and foam insulations', *Energy Build.*, vol. 144, pp. 358–371, Jun. 2017.

[44] U. Berardi and R. H. Nosrati, 'Long-term thermal conductivity of aerogel-enhanced insulating materials under different laboratory aging conditions', *Energy*, vol. 147, pp. 1188–1202, Mar. 2018.

[45] B. Chal, G. Foray, B. Yrieix, K. Masenelli-Varlot, L. Roiban, and J.-M. Chenal, 'Durability of silica aerogels dedicated to superinsulation measured under hygrothermal conditions', *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 272, pp. 61–69, Dec. 2018.

III. Modèles de transfert thermique dans les *blankets* aérogels de silice

Table des matières

Nomenclature 181
Introduction 183

III.1. Construction du modèle thermique des blankets 185
III.2. Conductivité thermique du squelette de silice 186
III.3. Conductivité thermique gazeuse du réseau de pores 190
III.4. Conductivité thermique gazeuse des fissures 195
III.5. Conductivité thermique de conduction du blanket 199
III.6. Conductivité radiative 204
III.7. Conductivité thermique effective 211
III.8. Conductivité thermique du blanket humide 215
III.9. Conclusion 216

Références 217

Nomenclature

Conductivité thermique [$\mathbf{W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$]

La liste des conductivités thermiques utilisées dans le chapitre est présentée ci-dessous. Pour ne pas alourdir le chapitre, certaines désignations seront simplifiées dans le texte. En particulier, on parlera de conductivité solide pour λ_{cs}, de conductivité gazeuse pour λ_g, et de conductivité radiative pour λ_r.

λ_0	Conductivité thermique effective du squelette
λ_b	Conductivité thermique du matériau massif
λ_c	Contribution de la conduction à la conductivité thermique
λ_{coupl}	Contribution de l'effet de couplage solide/gaz à la conductivité thermique
λ_{eff}	Conductivité thermique effective
λ_f	Contribution de la conduction solide des fibres à la conductivité thermique
λ_g	Contribution de la phase gazeuse à la conductivité thermique
λ_g^*	Conductivité thermique gazeuse effective (λ_g+λ_{coupl})
$\lambda_{g,0}$	Conductivité thermique du gaz dans un espace non confiné
$\lambda_{g,Kn}$	Contribution de la phase gazeuse à la conductivité thermique d'après la loi de Knudsen
λ_p	Conductivité thermique d'une nanoparticule
λ_r	Contribution du rayonnement à la conductivité thermique
λ_{cs}	Contribution du squelette solide à la conductivité thermique

Caractères latins

A	Fraction du transfert de chaleur en mode parallèle [–]
c	Chaleur spécifique [$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$]
C_V	Capacité thermique volumique [$J \cdot m^{-3} \cdot K^{-1}$]
C	Contraste de phase [–]
d	Épaisseur [m]
d_p	Diamètre de particule [m]
D	Diamètre de pores [m]
$e*$	Coefficient d'extinction spécifique effectif [$m^2 \cdot kg^{-1}$]
$e*_R$	Extinction spécifique effective moyenne de Rosseland [$m^2 \cdot kg^{-1}$]
$E*$	Extinction effective [m^{-1}]
$E_{b\Lambda}$	Exitance énergétique spectrale du corps noir [$W \cdot m^{-2} \cdot \mu m$]
E_b	Exitance énergétique totale du corps noir [$W \cdot m^{-2}$]
f_v	Fraction volumique de fibres [–]
F	Facteur de couplage [–]
m	Fraction massique [–]
n	Indice de réfraction [–]

P Pression [Pa]

R Rayon de pores [m]

T Température [K]

u Teneur en eau massique [$kg \cdot kg^{-1}$]

Lettres grecques

β Coefficient du gaz qui dépend de son coefficient adiabatique et de son coefficient d'accommodation [–]

ε Émissivité [–]

λ Conductivité thermique [$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$]

Λ Longueur d'onde [nm]

Λ_0 Libre parcours moyen des phonons dû à leur autodiffusion, aux effets de bords et aux contacts entre particules [m]

Λ_g Libres parcours moyen des molécules de gaz [m]

Λ_b Libre parcours moyen des phonons dû aux effets de bord [m]

Λ_p Libre parcours moyen des phonons dû à leur autodiffusion [m]

Λ_t Libre parcours moyen des phonons dû aux contacts entre particules [m]

ν Vitesse de propagation d'une onde sonore dans l'aérogel [$m \cdot s^{-1}$]

ν_0 Vitesse de propagation d'une onde sonore dans le squelette [$m \cdot s^{-1}$]

Π Porosité [–]

ρ Masse volumique de l'aérogel [$kg \cdot m^{-3}$]

ρ_0 Masse volumique du squelette de l'aérogel [$kg \cdot m^{-3}$]

σ Constante de Stéphan-Boltzmann

$\tau*$ Transmittance effective [–]

Φ Flux thermique [W]

Indices

* Effectif

a Aérogel

coupl Couplage

eff Effectif

f Fibres

g Gaz

H Humide

macro Macropores

meso Mésopores

p Particule

r Radiatif

s Solide

Introduction

L'objectif de cette partie est de développer des modèles de transfert de chaleur dans les *blankets* aérogels de silice. Les modèles proposés ont vocation à être simple d'utilisation pour des applications industrielles, ainsi seulement des modèles analytiques seront proposés. Les modèles sont construits à partir de la littérature des modèles thermiques de l'aérogel de silice natif et sont étendus aux cas des *blankets* aérogels de silice. On étudie en particulier les relations entre le transfert thermique et les paramètres morphologiques de l'aérogel tel que la densité, la fraction de fibres ou la taille des nanoparticules mais aussi l'impact de l'environnement extérieur tel que la pression, la température ou l'humidité. Les modèles de transferts de chaleur doivent faciliter les analyses des transferts thermiques au sein des *blankets* aérogels et permettre d'orienter la synthèse de nouveaux matériaux *blankets* pour une meilleure isolation thermique.
Les résultats des modèles proposés dans ce chapitre sont comparés avec ceux de la littérature ainsi qu'avec les résultats expérimentaux du chapitre II dans le cas des blankets étudiés.

On rappelle que dans un matériau poreux nanostructuré, il existe trois modes de transfert thermique que sont le transfert par conduction solide, par conduction gazeuse et par rayonnement. Ces trois modes de transfert sont considérés comme indépendants et un modèle classique de conductivité thermique effective s'écrit comme la somme des conductivités thermiques correspondant aux trois modes de transferts en parallèle :

$$\lambda_{eff} = \lambda_{cs} + \lambda_g + \lambda_r \tag{III.1}$$

D'après [1]–[4], les valeurs prédites obtenues à partir du modèle précèdent sont pour la plupart plus faibles que les mesures expérimentales. Cette différence est attribuée aux effets de couplages entre les différents modes de transferts.

En toute rigueur, il faut ajouter un terme de couplage à l'équation précédente qui tient compte des potentiels couplages entre chaque mode de transfert thermique.

$$\lambda_{coupl} = \lambda_{cs,g} + \lambda_{cs,r} + \lambda_{g,r} + \lambda_{cs,g,r} \tag{III.2}$$

avec $\lambda_{i,j}$ conductivité thermique correspondant au couplage entre les modes de transfert de chaleur i et j. Le couplage entre les trois modes de transfert de chaleur est du troisième ordre et il peut être négligé. On a vu dans le chapitre bibliographique que les autres couplages ont été reportés par de nombreux auteurs. Le couplage conduction solide – conduction gazeuse apparaît systématiquement pour des tailles de pores inférieures à 10 µm et le couplage radiatif – conductif dépend de l'épaisseur optique du matériau. En particulier, en dessous des longueurs d'onde 8 µm, l'aérogel de silice natif est optiquement fin, mais il est souvent considéré comme optiquement épais pour les calculs de conductivité thermique effective.

III.1 Construction du modèle thermique des blankets

L'incorporation de fibres dans la phase aérogel a plusieurs conséquences sur le transfert thermique. Premièrement, les fibres apportent de nouveaux chemins de conduction solide à travers les *blankets* qui doivent être pris en compte dans le terme de conduction λ_s. D'autre part, la présence de fibres va affecter le transfert radiatif dans le composite. Les fibres ont leurs propres propriétés d'extinction dans l'infrarouge, différentes de celles de la phase aérogel. Un choix judicieux des fibres et de leurs dimensions peut réduire le transfert radiatif en augmentant les phénomènes d'absorption et de diffusion infrarouge. Les propriétés d'extinction infrarouge des fibres doivent être prises en compte dans le terme λ_r. Enfin, on a vu par mesures en tomographie RX que l'incorporation des fibres induisait la présence de fissures de largeur caractéristique supérieure à 10 µm. Cela veut dire qu'il faut en tenir compte dans le transfert thermique du *blanket* comme s'il s'agissait d'une troisième phase $\lambda_{g,fissure}$.

Compte tenu de la présence de fibres ainsi que de l'épaisseur des *blankets*, le couplage radiatif/conductif (solide et gazeux) est négligeable puisque le matériau est optiquement épais, et ce même pour les courtes longueurs d'onde.

Concernant le couplage conduction solide/conduction gazeuse, on distingue deux cas de figure :

- Dans la phase aérogel de silice les dimensions caractéristiques des pores sont de l'ordre de la dizaine de nanomètres, on doit tenir compte du couplage.
- Dans les fissures, les dimensions caractéristiques des pores vont de la dizaine de micromètres au millimètre, le couplage peut être négligé et le modèle de Knudsen donne de bons résultats.

Le modèle de transfert thermique pour les *blankets* aérogels de silice se décompose en une contribution conductive et une contribution radiative :

$$\lambda_{eff} = \lambda_c + \lambda_r \tag{III.3}$$

avec λ_c la conductivité thermique prenant en compte la conduction solide des fibres (λ_f), la conduction solide du squelette de l'aérogel de silice (λ_{cs}), la conduction gazeuse de l'aérogel (λ_g), le couplage solide/gaz (λ_{coupl}) et la conduction gazeuse des fissures $\lambda_{g,fissure}$.

λ_r est la conductivité radiative prenant en compte l'extinction effective des fibres $E*_f$ et de l'aérogel de silice $E*_a$

Dans la suite du chapitre, nous détaillerons tous les termes de l'équation précédente et nous les étudierons en fonction des paramètres morphologiques du *blanket* et de l'environnement extérieur.

III.2 Conductivité thermique du squelette de silice

Les modèles de conductivité solide du squelette de silice ont déjà été mentionnés dans le chapitre bibliographique. On y retrouve des modèles théoriques basés sur la microstructure de l'aérogel de silice ainsi que des modèles empiriques basés sur les mesures de conductivité thermique en conditions cryogéniques. Du fait de la structure complexe et amorphe de la phase solide de l'aérogel de silice, les modèles couramment utilisés présentent des disparités importantes.

La conductivité thermique d'un solide amorphe est décrite par les vibrations localisées des phonons et celle-ci est limitée par l'autodiffusion des phonons dans le solide, modélisée par leur libre parcours moyen. Ce libre parcours moyen des phonons est très délicat à calculer en raison de la structure amorphe inhérente à l'aérogel. La déduction de la conductivité thermique solide à partir de la théorie cinétique cause ainsi de nombreux problèmes. Les modèles actuels sont basés sur l'hypothèse qu'il existe une loi entre conduction solide et propagation d'ondes sonores dans le matériau telle que :

$$\frac{\lambda_{cs}}{\lambda_0} = \frac{\rho v}{\rho_0 v_0} \tag{III.4}$$

avec λ_{cs} la conductivité solide de l'aérogel, λ_0 la conductivité du squelette, ρ la densité de l'aérogel, ρ_0 la densité du squelette, v la vitesse de propagation d'une onde sonore dans l'aérogel, v_0 la vitesse de propagation d'une onde sonore dans le squelette. Le terme λ_{cs} représente la contribution du squelette entier à la conductivité thermique effective du matériau. Il est plus faible que λ_0 car il prend en compte la tortuosité du réseau solide et toutes les masses mortes non connectées du réseau solide qui ne participe pas au transfert de chaleur.

Les densités et la vitesse de propagation d'une onde sont des variables connues pour le squelette et l'aérogel mais ce n'est pas le cas de la conductivité thermique du squelette λ_0.

On a vu que l'on pouvait considérer en première approximation la conductivité thermique du squelette comme celle du matériau constituant le squelette (modèle approché) ou bien la calculer à l'aide du modèle de Chen ou de Debye qui tiennent compte du libre parcours moyen des phonons dans le squelette. Les trois modèles sont rappelés ci-dessous :

Modèle approché $$\lambda_0 = \lambda_b \tag{III.5}$$

Modèle de Chen $$\lambda_0 = \lambda_b . \frac{3d_p}{3d_p + 8\Lambda_p} \tag{III.6}$$

Modèle de Debye $$\lambda_0 = \frac{1}{3}\rho_0 c v_0 \Lambda_0 \tag{III.7}$$

avec λ_b la conductivité thermique du matériau massif (silice), d_p le diamètre des particules, Λ_p le libre parcours moyen des phonons dans les particules de silice due uniquement à leur autodiffusion, ρ_0 la densité du squelette, c la chaleur spécifique du squelette, v_0 la vitesse de

propagation d'une onde sonore dans le squelette, Λ_0 le libre parcours moyen des phonons prenant en compte l'autodiffusion, les effets de bord et les contacts entre particules de silice. D'après la règle de Matthiessen et le modèle « *Super lattice nanowire* » [5] le libre parcours moyen effectif des phonons peut s'écrire :

$$\frac{1}{\Lambda_0} = \frac{1}{\Lambda_p} + \frac{1}{\Lambda_b} + \frac{1}{\Lambda_t} \tag{III.8}$$

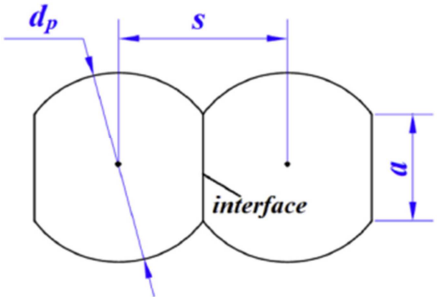
avec Λ_p le libre parcours moyen des phonons dû à leur autodiffusion, Λ_b le libre parcours moyen des phonons dû aux effets de bord, Λ_t le libre parcours moyen des phonons dû aux contacts entre nanoparticules.

Les libres parcours moyens se calculent comme ci-dessous :

$$\Lambda_p = 3\lambda_b/(C_V \nu_0) \tag{III.9}$$

$$\Lambda_b = \frac{1}{a}\frac{2A_i}{A_{eff}} + \frac{1}{d_p}\frac{A_s}{A_{eff}} \tag{III.10}$$

$$\Lambda_t = \frac{3sa^2}{4d_p^2} \tag{III.11}$$



Les paramètres s , d_p et a sont des paramètres géométriques décrits sur la figure ci-contre. Les termes A_i et A_s sont respectivement la surface de l'interface entre deux nanoparticules, et la surface extérieure entre deux nanoparticules exprimées par $A_i = \pi a^2/4$ et $\mathrm{A_s = \pi d_p s}$. A_{eff} est la surface efficace de diffusion d'une nanoparticule de silice, $A_{eff} = A_s + 2A_i$

Figure III.2-1: Géométrie des nanoparticules de silice

Dans notre étude, nous considérons un rapport a/d_p = 0,7 pour les calculs, ce qui satisfait la plupart des aérogels de silice. La densité du squelette de silice est prise à ρ_0 = 2000 kg · m^{-3}, la conductivité thermique de la silice à λ_b = 1,38 W · m^{-1} · K^{-1} et la vitesse de propagation d'une onde sonore dans le squelette à ν_0 = 5500 m · s^{-1}. Pour les aérogels de silice avec une densité comprise entre 50 kg · m^{-3} et 300 kg · m^{-3}, la vitesse de propagation du son ν varie entre 140 m · s^{-1} et 340 m · s^{-1} (voir chapitre bibliographique pour les détails de calculs). La chaleur spécifique du squelette de silice est prise égale à celle de l'aérogel, et peut être trouvé en fonction de la température dans [6]. La Figure III.2-2 illustre l'influence de la taille de nanoparticules sur la conductivité thermique solide de la phase aérogel de silice pour les trois modèles théoriques proposés. On voit que le modèle approché néglige l'effet de taille des nanoparticules puisque la conductivité thermique du squelette est indépendante de la taille des nanoparticules. Le modèle de Chen et le modèle de Debye modélisent le libre parcours moyen des phonons. Ils montrent qu'au-dessous d'un diamètre de nanoparticule de 20 nm, la

conductivité thermique du squelette est réduite grâce à l'effet de taille des nanoparticules qui gêne la propagation des phonons.

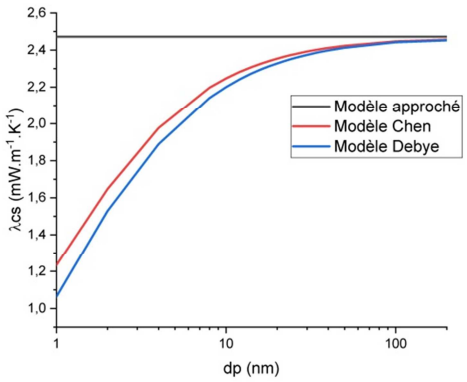


Figure III.2-2: Conductivité thermique du squelette de l'aérogel de silice (ρ=110 kg · m^{-3}) en fonction du diamètre des nanoparticules de silice à T=300 K.

La conductivité thermique en fonction de la densité de l'aérogel et de la température a été tracée en Figure III.2-3. L'influence de la densité de l'aérogel est similaire pour les trois modèles. Elle suit une loi d'échelle du type $\lambda_{cs} = A\rho^b$ avec A entre 1,5.10^{-4} et 3.10^{-4} et b le facteur d'échelle entre 1,9 et 2. La conductivité thermique solide augmente avec la densité de l'aérogel. Un aérogel de silice plus dense a une fraction solide plus importante et contribue de manière plus significative à la conduction solide. L'influence de la température sur la conductivité thermique du solide reste relativement faible. La conductivité solide augmente de seulement de 2 mW · m^{-1} · K^{-1} entre 300 K et 800 K, elle suit les tendances de la silice constituant le squelette. La différence de tendance observée au-dessous de 500 K vient du fait que le modèle de Debye suit la variation de la chaleur spécifique de la silice avec la température, tandis que le modèle approché et le modèle de Chen suivent la variation de conductivité thermique de la silice. Pour les calculs, la conductivité thermique de la silice en fonction de la température suit la loi $\lambda_b(T) = 7{,}53.10^{-1} + 3.13.10^{-3}T - 4.52.10^{-6}T^2 + 3.52.10^{-9}T^3$ [7].

Les modèles de conduction solide phononique de l'aérogel sont comparés avec les données expérimentales de Fricke [8] et Scheuerpflug [9]. On trouve une bonne corrélation pour la dépendance en densité et les données de Fricke. Pour la dépendance en température, les données expérimentales de Scheuerpflug semblent suivre le modèle de Debye basé sur la chaleur spécifique de la silice. Au-delà de 300 K, on ne peut conclure sur la validité du modèle puisqu'aucune donnée de conductivité solide n'a été répertoriée dans la littérature. En effet, à partir de 300 K, le transfert radiatif n'est plus négligeable et il devient délicat d'isoler la conduction solide lors de mesures expérimentales.

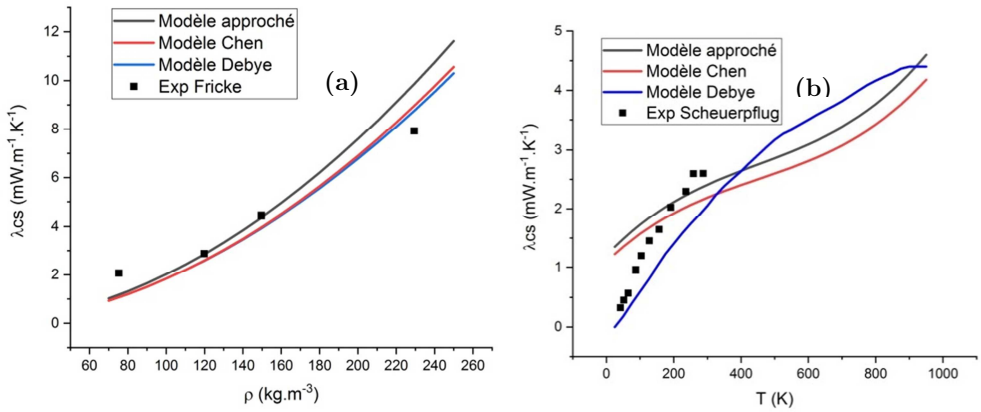


Figure III.2-3: Conductivité thermique du squelette de l'aérogel de silice pour une taille de nanoparticule de 15 nm. (a) En fonction de la densité à T=300 K. Mesures expérimentales de Fricke [8] à T=300 K.

(b) En fonction de la température pour ρ=110 kg · m^{-3}. Mesures expérimentales de Scheuerpflug [9] pour ρ=71 kg · m^{-3}.

Les modèles empiriques de conduction solide proposés par Scheuerpflug [9] et Kamiuto [10] donnent des résultats similaires en terme de tendance (Figure III.2-4), mais qui sont supérieurs à ceux calculés à partir des modèles théoriques phononiques pour des densités inférieures à 220 kg · m^{-3}. L'étude de la relation entre conduction solide du squelette et taille des nanoparticules n'a cependant pas été faite. Néanmoins, ces modèles sont en accord avec les récentes expériences de Bi et al.[11].

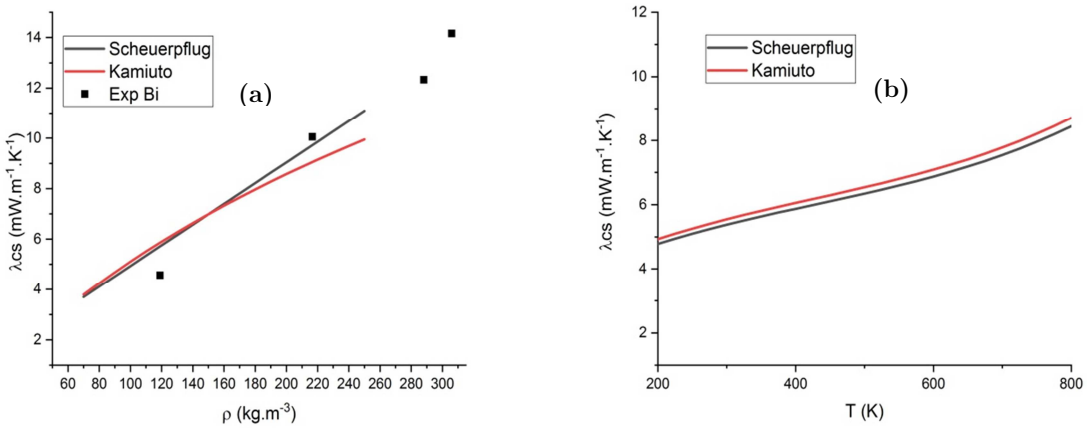


Figure III.2-4: Conductivité solide du squelette d'un aérogel de silice à partir de modèle empirique. a) En fonction de la densité à T=300 K et mesures expérimentales de Bi et al.[11] à 300 K (b) En fonction de la température à ρ=110 kg · m^{-3}.

On voit que l'étude de la conductivité solide de l'aérogel de silice est une tâche difficile. Les modèles théoriques et empiriques donnent des résultats variant du simple au double pour les faibles densités. Les données expérimentales sont peu fournies du fait de la complexité de la mesure (mesures sous vide, cryogénie), et selon les auteurs, elles permettent de valider les différents modèles.

III.3 Conductivité thermique gazeuse du réseau de pores

On a vu par les expériences de conductivité thermique sous vide que la conduction gazeuse jouait un rôle important dans le transfert de chaleur d'un aérogel (environ 70 %). Le diamètre de pores moyen d'un aérogel est 10-50 nm et donc inférieur au libre parcours moyen des molécules d'air (72 nm à 1 bar et 293 K). Les collisions aléatoires entre les molécules d'air sont fortement réduites par le squelette de silice, ce qui mène à la raréfaction de l'air ou régime de Knudsen. Même à pression ambiante, la conduction gazeuse est réduite par la taille des pores nanométriques.

La conduction gazeuse dans un matériau poreux/fibreux est généralement décrite par la formule de Knudsen – ou modèle de Kaganer - qui tient compte des effets de taille des pores et de la pression :

$$\lambda_{g,Kn}(P,T) = \frac{\Pi.\lambda_{g,0}(P,T)}{1 + 2.\beta(T).Kn(P,T)} \qquad \text{(III.12)}$$

avec $\lambda_{g,Kn}(P,T)$ la conductivité thermique gazeuse décrite par le modèle de Knudsen, Π la porosité du matériau, $\lambda_{g,0}(P,T)$ la conductivité thermique du gaz dans un espace non confiné, $\beta(T)$ un coefficient qui dépend du gaz. Le coefficient $\beta(T)$ est fonction du coefficient adiabatique et du coefficient d'accommodation du gaz.

La formule de Knudsen prédit de façon raisonnable la conduction gazeuse pour des tailles de pores $>$ 10 µm [12] mais sous-estime notablement la conduction gazeuse pour des pores plus petits, en particulier pour des structures composées de nanoparticules agglomérées comme les aérogels de silice. Le modèle de Zeng et al.[13] basé sur la théorie cinétique donne des résultats qui concordent avec l'expérimental, mais sous-estime toujours la conduction pour des tailles de pores supérieures à 100 nm.

De nombreuses études s'accordent pour dire que les formules de Knudsen et le modèle de Zeng ne décrivent pas correctement le transfert thermique gazeux dans un aérogel de silice pour des structures de nanoparticules agglomérées, car ces modèles négligent l'effet du couplage solide/gaz aux abords des nanoparticules. Ce couplage est omis dans presque toutes les études de transferts thermiques des aérogels alors qu'il est du même ordre de grandeur que la conduction gazeuse seule.

Les modèles de couplage de Bi et al.[11] et Swimm et al.[3] sont les seuls modèles analytiques présents dans la littérature (voir chapitre bibliographique) et donnent des résultats proches de l'expérience. Ces modèles sont basés sur la géométrie de deux nanoparticules de silice en contact sur laquelle le transfert thermique est calculé par une succession de modèles séries et/ou parallèles. Ils permettent de calculer le terme de couplage (λ_{coupl}) dont les formules sont rappelées ci-dessous :

Modèle de Swimm

$$\lambda_{coupl} = \frac{\frac{3}{2}(1-\Pi)2R}{\pi R^2} \sum_{i=1}^{N} \left(\frac{\delta_i}{\lambda_{g,Kn,i} A_i} + \frac{y_i}{\lambda_p A_i} \right)^{-1} \quad \text{(III.13)}$$

Modèle de Bi

$$\lambda_{coupl} = \frac{2}{3} \frac{(D+d_p)}{d_p} \left(\frac{2\lambda_p \lambda_{g,Kn}}{\lambda_{g,Kn} - \lambda_p} \right) [1 - \frac{D+d_p}{d_p} \frac{\lambda_p}{\lambda_{g,Kn} - \lambda_p} \ln(1 + \frac{\lambda_{g,Kn} - \lambda_p}{\lambda_p} \frac{d_p}{D+d_p}) \quad \text{(III.14)}$$

Les détails concernant ces deux équations pourront être retrouvés dans le chapitre bibliographique.

En calculant la conduction gazeuse à partir des modèles avec et sans couplage, on peut définir un facteur F tel que :

$$F = \frac{\lambda_{coupl} + \lambda_{g,Kn}}{\lambda_{g,Kn}} \quad \text{(III.15)}$$

On définit alors la nouvelle formule de conductivité gazeuse « effective » λ_g^* à partir de la loi de Knudsen classique et de ce facteur F appelé facteur de couplage, qui tient compte de l'effet de couplage solide/gaz. A priori, F dépend de la taille de pores, de la taille des nanoparticules et de la pression.

$$\lambda_g^* = F(d_p, D, P) \lambda_{g,Kn} \quad \text{(III.16)}$$

Pour un aérogel standard, et en conditions ambiantes, le facteur de couplage vaut entre 1,8 et 2 d'après les modèles de Swimm et de Bi. Cela signifie que l'effet du couplage est aussi important que la conduction gazeuse calculée d'après la loi de Knudsen. Nous avons tracé en Figure III.3-1 l'évolution de ce facteur de couplage en fonction de la taille de pores, du diamètre des nanoparticules et de la pression.

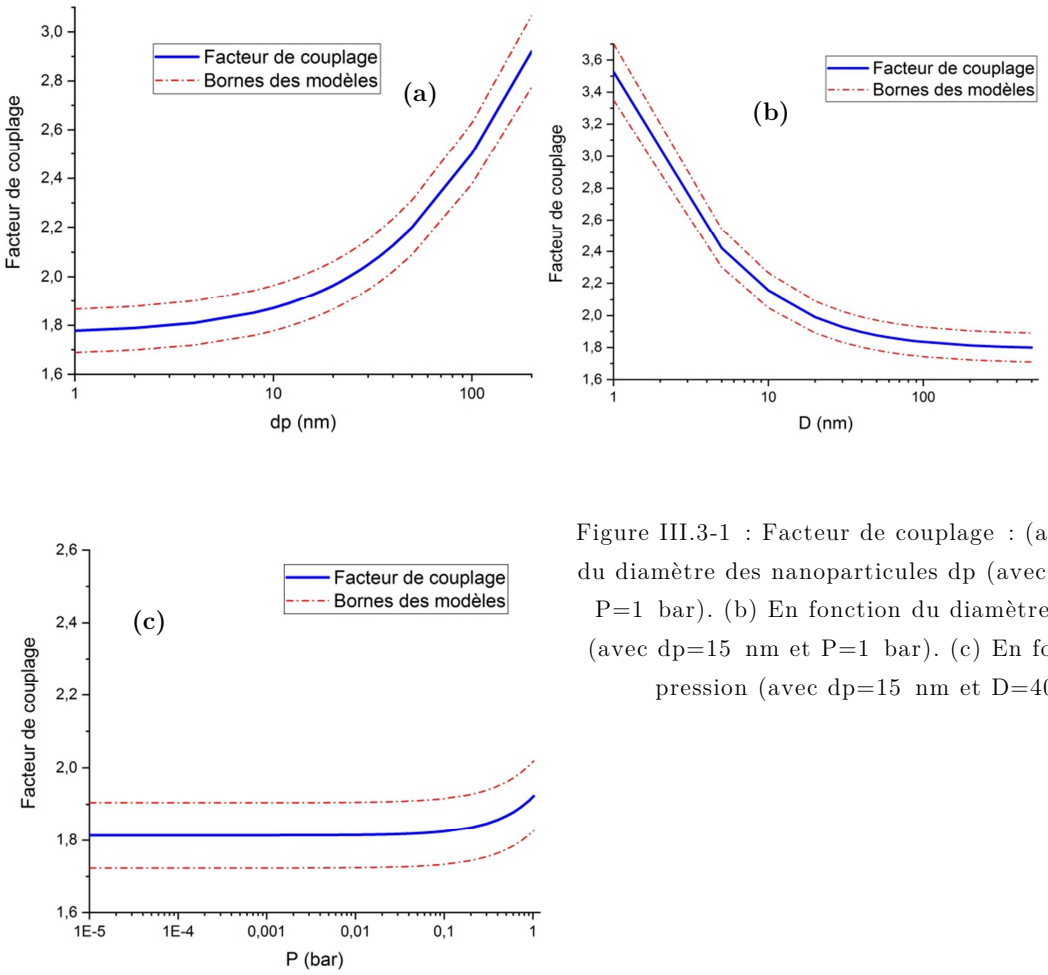


Figure III.3-1 : Facteur de couplage : (a) En fonction du diamètre des nanoparticules dp (avec D=40 nm et P=1 bar). (b) En fonction du diamètre de pores D (avec dp=15 nm et P=1 bar). (c) En fonction de la pression (avec dp=15 nm et D=40 nm).

D'après la Figure III.3-1, le facteur de couplage varie de façon notable avec les paramètres morphologiques de l'aérogel mais peu avec la pression. L'augmentation de la taille des particules de silice va augmenter la zone de couplage solide/gazeux aux abords de celles-ci d'où l'accroissement de F. Également, lorsque le diamètre de pores devient plus faible que celui des nanoparticules, l'influence du couplage devient plus importante.

Néanmoins, pour des aérogels de silice classiques on peut considérer le facteur de couplage quasi constant égal à 1,9 pour dp $<$ 20 nm et D $>$ 20 nm. Récemment, Swimm et al. [14] ont mené des études similaires sur le facteur de couplage dans les matériaux poreux. En utilisant leur modèle, ils ont calculé des facteurs de couplage entre 1,3 et 3,3 en fonction du rapport d_p/D (avec une relation approchée du type $\approx 1 + \frac{d_p}{D}$) et à-peu-près constant en fonction de la pression, en considérant l'argon comme gaz interstitiel pour l'étude.

Nous avons ensuite tracé les courbes de conductivité thermique gazeuse obtenues par ce modèle simplifié prenant en compte l'effet de couplage et nous les avons confronté à celles obtenues avec les autres modèles existants ainsi qu'aux données expérimentales de Fricke [8] , Wei [7] et Zeng [13]. On voit sur la Figure III.3-2a que le modèle simple de Kaganer (loi de Knudsen) ne suffit pas à décrire la conductivité thermique gazeuse de l'aérogel de silice. Celui-ci sous-estime systématiquement la conduction gazeuse par rapport aux résultats obtenus expérimentalement.

En particulier, à P = 1 bar, le modèle de Kaganer évalue la conduction gazeuse à 4 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ pour un aérogel classique au lieu de 7 à 12 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ d'après l'expérience. Le modèle de Zeng et la loi de Knudsen avec un facteur $F = 1{,}9$ donnent de bonnes corrélations avec l'expérience. On voit qu'en dessous de 0,01 bar la conduction gazeuse dans un aérogel de silice est pratiquement entièrement supprimée.

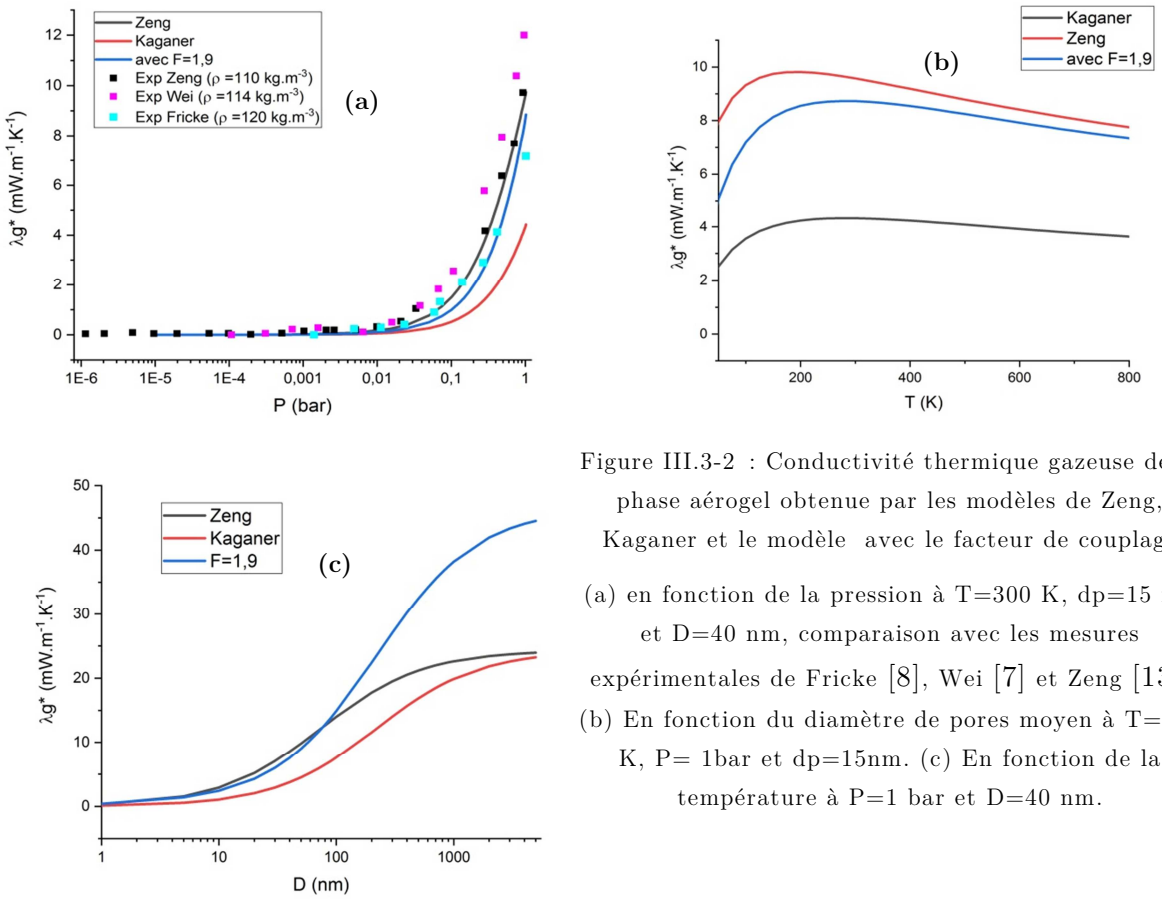


Figure III.3-2 : Conductivité thermique gazeuse de la phase aérogel obtenue par les modèles de Zeng, Kaganer et le modèle avec le facteur de couplage (a) en fonction de la pression à T=300 K, dp=15 nm et D=40 nm, comparaison avec les mesures expérimentales de Fricke [8], Wei [7] et Zeng [13]. (b) En fonction du diamètre de pores moyen à T=300 K, P= 1bar et dp=15nm. (c) En fonction de la température à P=1 bar et D=40 nm.

Sur la Figure III.3-2b qui décrit l'évolution de la conduction gazeuse en fonction de la température à pression ambiante, on voit encore l'insuffisance du modèle de Kaganer à décrire le transfert thermique gazeux. La loi de Knudsen avec $F = 1{,}9$ donne des résultats proches de ceux de Zeng. La conduction gazeuse varie peu entre 50 K et 800 K, car elle est principalement gouvernée par l'augmentation de l'agitation thermique des molécules d'air et la diminution de leur libre parcours moyen avec la température. La Figure III.3-2c montre l'évolution de la conductivité thermique gazeuse d'un matériau poreux à structure agglomérée en fonction de la taille moyenne de ses pores. Encore une fois, le modèle de Kaganer est en deçà du modèle de Zeng et de notre modèle couplé pour tout diamètre de pore. En dessous de 100 nm, le modèle de Zeng et notre modèle couplé font des prédictions très proches. On a vu qu'en toute rigueur le facteur de couplage F varie avec la taille de pores, et en particulier en dessous de 20 nm. Cependant, pour de telles tailles de pores, la conduction gazeuse est proche de 0, et donc l'erreur faite en approximant F constant est négligeable. Au-delà de 100 nm, notre modèle de couplage donne des résultats bien supérieurs à ceux de Zeng et Kaganer, et la

conductivité gazeuse dépasse même la conductivité thermique de l'air au repos. Ce résultat peut paraitre surprenant compte tenu du fait que physiquement, lorsque la taille du pore devient très grande, la conductivité thermique gazeuse devrait converger vers celle de l'air au repos (ou du gaz en question) tant que la convection est négligeable (D < 1mm), comme l'illustre la Figure III.3-3.

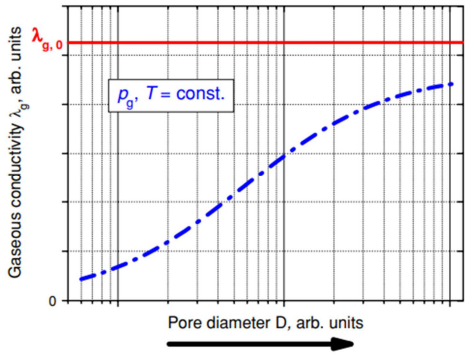


Figure III.3-3 : Conduction gazeuse d'un matériau poreux quelconque en fonction du diamètre de pores moyen.

Cependant, les résultats du modèle de couplage sont plus en accord avec les mesures expérimentales de Swimm et al.[3] sur les aérogels résorcinol formaldéhyde de taille de pores 0,6-7 µm et ceux de Hemberger et al.[2] sur des aérogels de carbone de taille de pores 0,7-11 µm dont la conduction gazeuse dépasse celle du gaz au repos à pression ambiante. On parle bien ici du terme λ_g^* qui prend en compte le couplage et donc une partie du transfert solide, et non de λ_g qui lui tend bien vers la conductivité thermique du gaz au repos $\lambda_{g,0}$.

En réalité, les modèles de couplage proposés considèrent une connectivité du réseau identique, quelle que soit la taille de pores, mais ce n'est pas le cas (*e.g.* le modèle de Bi considère que les aérogels de silice ont 2/3 de leur squelette solide connecté). *A fortiori* pour une taille de pores extrêmement grande, la fraction de squelette solide connecté tend vers 0 et le couplage devient négligeable.

Les modèles actuels restent donc valides dans le cas bien spécifique d'aérogels classiques (silice, RF ou carbone) avec les tailles de pores que l'on rencontre usuellement. À partir d'une certaine taille de pores – qui reste encore à définir – les limites du modèle de couplage sont atteintes. C'est pour cela qu'on ne voit pas F converger vers 1 sur la Figure III.3-1b.

III.4 Conductivité thermique gazeuse des fissures

Les mesures en tomographie X ont montré la présence d'au moins 7 % de fissures macroscopiques de largeur caractéristique > 10 µm dans les *blankets*. Pour de telles tailles de pores, le couplage solide/gaz est négligeable et on peut utiliser la loi de Kaganer _ *i.e.* la formule de Knudsen – sans facteur de couplage pour calculer la conductivité thermique gazeuse dans les fissures $\lambda_{g,fissure}$:

$$\lambda_{g,fissure}(P,T) = \frac{\Pi_{fissure}.\lambda_{g,0}(P,T)}{1+2.\beta(T).\frac{\Lambda_g(P,T)}{D_{fissure}}} \quad \text{(III.17)}$$

avec $\Pi_{fissure}$ la porosité macroscopique du blanket, c'est-à-dire la fraction volumique des fissures dans le matériau, $\lambda_{g,0}(P,T)$ la conductivité thermique du gaz dans un espace non confiné, $\beta(T)$ un coefficient qui dépend du gaz, Λ_g le libre parcours moyen des molécules d'air dans les fissures et $D_{fissure}$ le diamètre caractéristique des fissures.

La difficulté dans cette équation – au même titre que pour le calcul de la conduction gazeuse de la phase aérogel est la détermination du diamètre caractéristique des fissures. Afin de déterminer les diamètres caractéristiques des fissures et des tailles de pores de la phase aérogel, nous avons tiré profit des essais de conductivité thermique des *blankets* étudiés en fonction de la pression, présentés et discutés dans la partie « *caractérisation* ». On a vu que le tracé de la conductivité thermique effective du matériau avec la pression nous renseigne sur la texture poreuse de ce dernier. Dans la partie caractérisation, les résultats de l'expérience ont permis de décrire qualitativement la texture poreuse des matériaux. Dans le cas présent, nous décrirons de façon quantitative la texture poreuse en couplant les données expérimentales avec les formules de transfert thermique de Kaganer et de couplage.

La conduction gazeuse totale du *blanket* suit théoriquement la loi suivante :

$$\lambda^*_{g,tot} = \frac{F.\Pi_{meso}.\lambda_{g,0}}{1+2.\beta.\frac{\Lambda_g}{D_{meso}}} + \frac{\Pi_{fissure}.\lambda_{g,0}}{1+2.\beta(T).\frac{\Lambda_g}{D_{fissure}}} \quad \text{(III.18)}$$

La conduction gazeuse totale du *blanket* s'écrit comme la somme de la conduction gazeuse de l'aérogel (d'où la présence du facteur de couplage pour prendre en compte le couplage) et de la conduction gazeuse à travers les fissures.

A priori, les paramètres inconnus sont les contributions à la porosité globale $\Pi_{fissure}$, Π_{meso}, le facteur de couplage F et les dimensions caractéristiques de pores D_{meso} et $D_{fissure}$. Néanmoins, à partir de nos observations morphologiques et de la littérature, on peut encadrer ces valeurs grossièrement : $1 < F < 3$; $0{,}6 < \Pi_{meso} < 0{,}95$; $10\ \text{nm} < D_{meso} < 100\ \text{nm}$; $0{,}05 < \Pi_{fissure} < 0{,}4$; $10\ \mu\text{m} < \Pi_{fissure} < 2\ \text{mm}$. On a également la porosité globale du blanket qui est égale à la somme des porosités : $\Pi_{meso}+\Pi_{fissure} = 0{,}9$.

En ajustant les paramètres inconnus de l'équation bimodale avec les données expérimentales, on identifie un unique ensemble de paramètres répondant à l'équation (III.18) et aux limites fixées. Les « *fitting*s » des courbes expérimentales sont présentés en Figure III.4-1.

En considérant une distribution poreuse bimodale, on trouve pour tous nos *blankets* NGF : D_{meso} = 45-65 nm, Π_{meso} = 70-80 %, $D_{fissure}$ = 200 µm à 1,2 mm selon les échantillons, $\Pi_{fissure}$ = 10-20 % et F = 2-2,5.

Ces résultats s'accordent bien avec nos caractérisations du matériau : la taille de pores moyenne de la phase aérogel déterminée par mesures BET est D_{meso} = 50 nm et sa porosité 95 %. Les *blankets* aérogels étudiés sont composés approximativement de 85 % d'aérogel, 5 % de fibres et 10 % de fissures, on retrouve bien la contribution mésoporeuse à la porosité globale $\Pi_{meso} = 0{,}95 \cdot 0{,}85 \approx 0{,}80$. La fraction volumique de fissures et la dimension caractéristique des fissures concordent avec les observations faites en tomographie X, et le facteur de couplage égal à 2-2,5 est proche de celui calculé en Figure III.3-1, bien que légèrement supérieur.

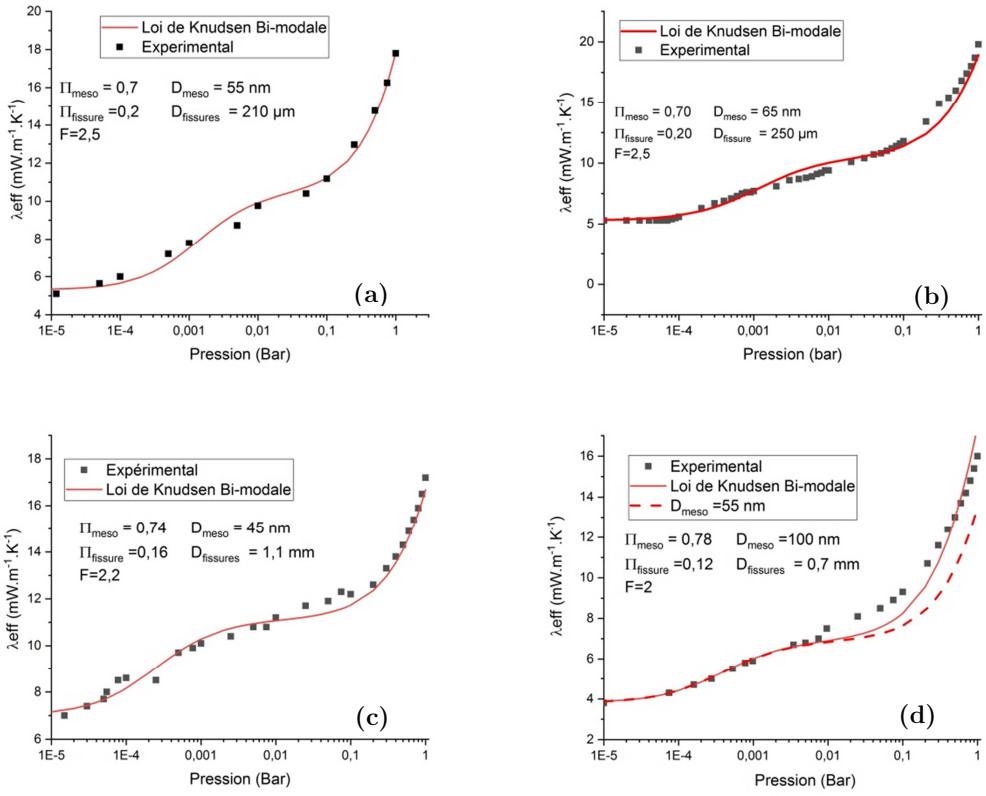


Figure III.4-1: Identification des paramètres Π, D, F par *fitting* de l'équation de Knusen bimodale avec les données expérimentales (méthode de Nelder-Mead). (a) et (b) : Cas du NGF_6mm, (c) : Cas du NGF_24mm, (d) : Cas du PET

On remarque que pour le cas du PET, la régression n'est pas optimale. La courbe en rouge (non pointillée) correspond à un diamètre de mésopore moyen de 100 nm, qui est la borne haute de notre modèle. On sait d'après les caractérisations texturales que la taille de pores moyenne se situe autour de 45-55 nm et donc que la régression avec les données expérimentales du PET est fausse. La raison provient du fait que notre modèle ne tient pas compte de la

possibilité d'une présence de pores dans la région 100 nm-10 µm; or on sait qu'en raison de la nature fractale du réseau poreux, il existe des pores dans ce domaine là.

Si l'on considère que le *blanket* est composé d'une phase aérogel de mésoporosité uniforme (D_1,Π_1) avec des macropores plus grands à l'échelle du micron (D_2,Π_2) et des pores encore plus grands à l'échelle du millimètre représentés par les fissures (D_3,Π_3), alors on peut étendre la relation de Knusden à une distribution de taille de pores trimodale :

$$\lambda^*_{g,tot} = \Pi_1\lambda^*_g(D_1) + \Pi_2\lambda_g(D_2) + \Pi_3\lambda_g(D_3) \qquad \text{(III.19)}$$

En optimisant les paramètres à nouveau pour le cas d'une distribution de pores trimodale, on obtient les régressions suivantes :

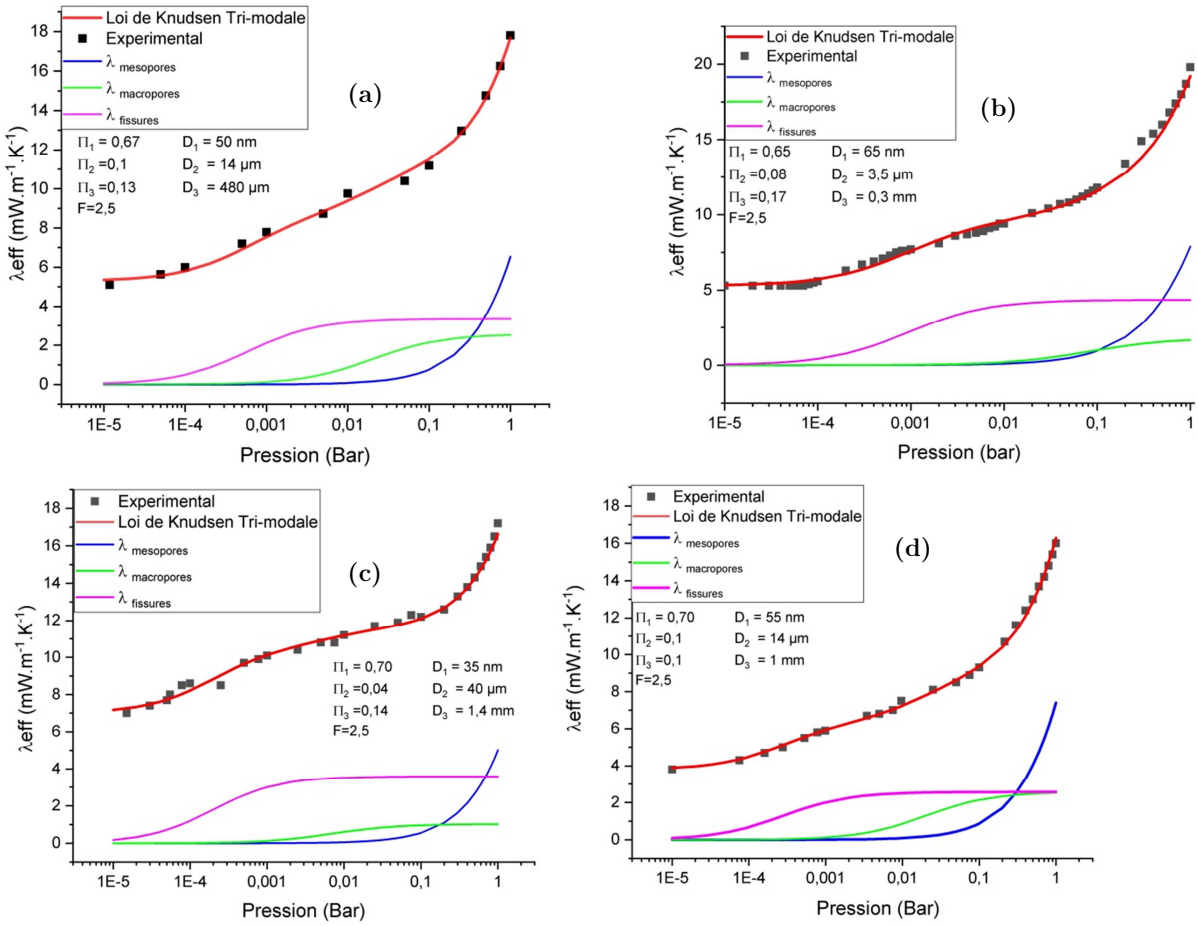


Figure III.4-2: Identification des paramètres Π, D, F par *fitting* de l'équation de Knusen trimodale avec les données expérimentales (méthode de Nelder-Mead). (a) et (b) : Cas du NGF_6mm, (c) : Cas du NGF_24mm, (d) : Cas du PET

L'utilisation d'un modèle de pores trimodal donne de meilleurs résultats de régression avec les données expérimentales. En particulier, la régression avec les données du PET devient possible. On peut voir sur les courbes les trois composantes de transfert thermique gazeux du modèle que sont la conduction des mésopores, des macropores et des fissures.

Les différentes tailles de pores affectent de manière quasi indépendante la conduction gazeuse sur certaines plages de pression. Les mésopores ont une influence dominante sur la conduction gazeuse pour p = 0,1-1 bar, les macropores (1-50 µm) ont une influence dominante sur la conduction sur la plage de pression $p = 10^{-3}$-10^{-2} bar et les fissures ont une influence dominante sur la conduction sur la plage de pression $p = 10^{-5}$-10^{-3} bar.

Dans le cas trimodal, le facteur de couplage est calculé à F = 2,5 pour tous les *blankets*, valeur supérieure à celle calculée théoriquement à partir des modèles analytiques (F = 1,8-2). On peut comparer cette valeur à celles de Swimm et al.[15] obtenues par *fit* avec la relation de Knudsen sur des mesures expérimentales de conductivité thermique en fonction de la pression d'argon pour des aérogels de carbone et RF. Les valeurs trouvées valent F = 2,2 pour l'aérogel RF et F = 2,9 pour l'aérogel de carbone. Ces auteurs concluent également que ce facteur de couplage dépend du gaz interstitiel utilisé et de la porosité de l'aérogel.

Notre modèle trimodal estime la taille moyenne de mésopore à 35-65 nm et la contribution de la fraction mésoporeuse à 65-70 %. La taille de macropore moyenne est estimée à 3-40 µm avec une contribution de la fraction macroporeuse de 4 à 10 %.

Enfin, on observe en moyenne 10 à 17 % de fissures dans les *blankets* étudiés avec des tailles de pores moyennes variant de 300 microns à quelques millimètres.

Les valeurs de porosité et de diamètre de pores moyen calculées par régression nous permettent de retrouver les conclusions de la partie « *Caractérisation* », à savoir que le NGF_6mm (surtout le cas (b)) dispose d'une plus grande fraction volumique de fissures que le PET, mais que la taille moyenne de ces fissures est plus petite. On retrouve également le résultat sur les diamètres de pores moyen : $D_{\text{macro+fissures NGF_24mm}} > D_{\text{macro+fissures PET}} > D_{\text{macro+fissures NGF_6mm}}$

La méthode proposée est une méthode inverse pour caractériser la texture poreuse d'un *blanket* aérogel ayant une distribution de taille de pores à multiples échelles. L'étude expérimentale de la dépendance à la pression permet dans notre cas de caler notre modèle de conduction gazeuse totale.

III.5 Conductivité thermique de conduction du blanket

La conductivité thermique de conduction du *blanket* regroupe la conduction (solide et gazeuse) de la phase aérogel de silice $\lambda_{c,aérogel} = \lambda_{cs} + \lambda_g$, la conduction des fibres du blanket λ_f et la conduction gazeuse des fissures $\lambda_{g,fissures}$.

Les paragraphes précédents ont permis d'établir des modèles analytiques simples pour la prédiction de la conduction de la phase aérogel. La Figure III.5-1 montre l'évolution de cette conduction en fonction de la densité de l'aérogel, de la pression et de la température.

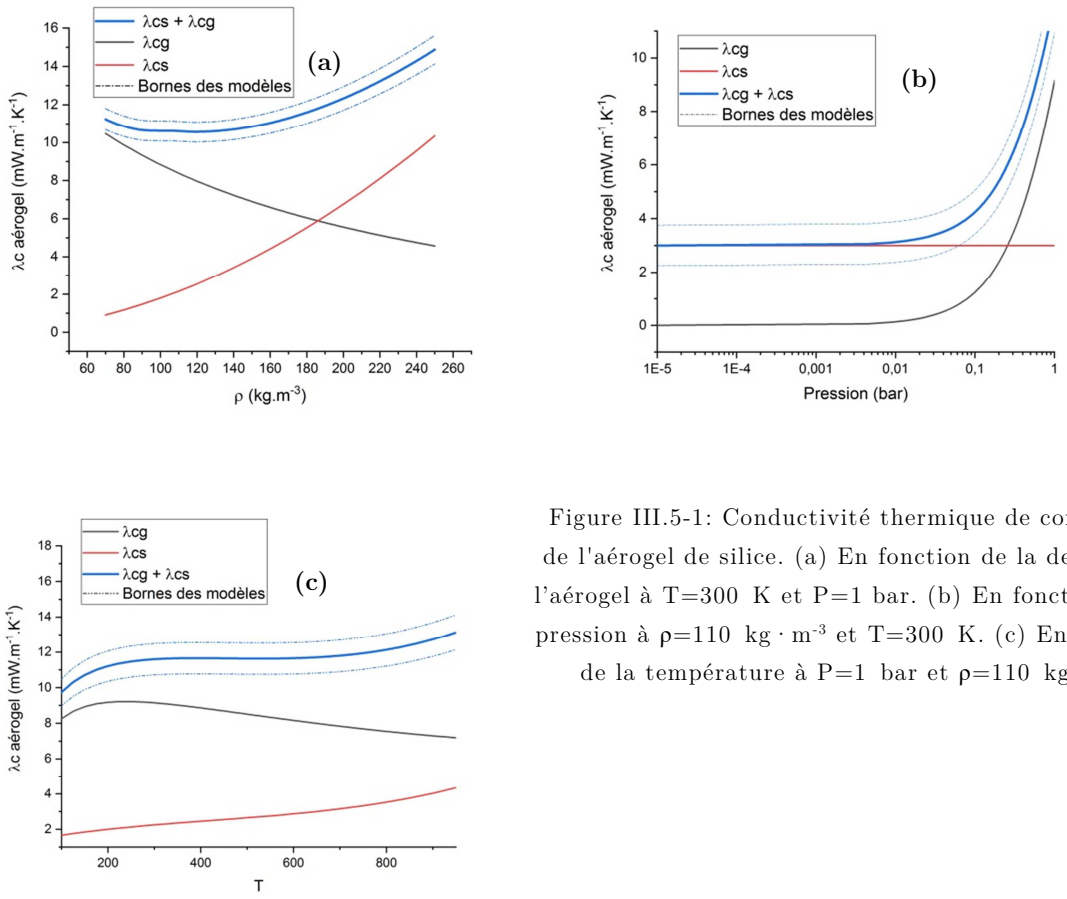


Figure III.5-1: Conductivité thermique de conduction de l'aérogel de silice. (a) En fonction de la densité de l'aérogel à T=300 K et P=1 bar. (b) En fonction de la pression à ρ=110 kg · m^{-3} et T=300 K. (c) En fonction de la température à P=1 bar et ρ=110 kg · m^{-3}

L'évolution de la conduction de l'aérogel avec sa densité est un résultat classique de transfert thermique des aérogels de silice. On obtient une densité optimale qui minimise les deux types de conduction (solide et gazeuse) vers 110 kg · m^{-3}. La prise en compte du transfert radiatif dans les calculs accentuera d'avantage ce minimum, puisque celui-ci est important à faible densité et quasiment négligeable à haute densité, pour une température ambiante. L'évolution de la conduction avec la pression suit celle de la conduction gazeuse puisque la conduction solide est indépendante de la pression. La température elle, à peu d'influence sur la conduction entre 50 K et 800 K.

Pour la phase fibreuse, il faut considérer la conductivité thermique des fibres mêmes. On étudiera les fibres de verre ayant une conductivité thermique $\lambda_{f,verre} = 0{,}7$ W · m^{-1} · K^{-1} à 300 K, et les fibres de PET ayant une conductivité thermique $\lambda_{f,pet} = 0{,}2$ W · m^{-1} · K^{-1} à

300 K. La conductivité d'une fibre ne dépend que de la température, on utilisera les corrélations suivantes pour les calculs :

50K<T<900K $$\lambda_{f,verre} = 0{,}24623 + 0{,}00149T \quad \text{(III.20)}$$

50K <T<340K $$\lambda_{f,pet} = 10^{-1{,}2414+0{,}235\log(T)} \quad \text{(III.21)}$$

Pour le calcul de conductivité thermique de conduction, on considère le *blanket* comme un matériau composite composé de trois phases : aérogel, fibres et fissures. On peut alors appliquer la théorie d'homogénéisation des matériaux composites en associant la résistance thermique effective de conduction du composite à un arrangement de résistance thermique série ou parallèle. Une première approximation consiste à négliger l'influence des fibres sur le transfert thermique des fissures. Étant donné la faible fraction volumique de fibres et de fissures, le résultat final ne sera pas impacté par cette approximation. D'un point de vue conduction thermique, on peut donc réduire le problème en considérant le *blanket* comme un composite biphasique (aérogel +fibres) dans lequel s'effectue un transfert gazeux dans les fissures en parallèle de manière indépendante.

La conductivité thermique d'un composite biphasique fait intervenir deux paramètres fondamentaux : le contraste de phase qui est le rapport de conductivité thermique entre les deux phases $C = \lambda_f/\lambda_{c,aérogel}$ et les fractions volumiques de chacune de ces phases. Ensuite, selon la géométrie, l'orientation et le type d'inclusion de la phase minoritaire, la littérature [16]–[18] propose de nombreux modèles adaptés à la conductivité thermique du composite.
La conductivité thermique effective d'un matériau composite étant complexe, nous utiliserons donc le concept de borne théorique limite. Connaissant la fraction volumique de chaque phase, les bornes les plus simples à construire sont analogues à des résistances disposées en parallèle ou en série (voir Figure III.5-2). Pour un agencement de fibres parfaitement perpendiculaires au flux de chaleur, la conductivité thermique effective du composite se rapprochera de la borne basse du modèle série tandis que pour des fibres parfaitement parallèles au flux de chaleur, elle se rapprochera de la borne haute du modèle parallèle. Pour les *blankets*, les mats de fibres utilisés comportent une majorité de fibres perpendiculaires au flux de chaleur, la conductivité thermique du *blanket* devrait alors suivre le modèle **série** d'homogénéisation.

$$Parallele : \lambda_{c,par} = f_v.\lambda_f + (1 - f_v).\lambda_{c,aerogel} \quad \text{(III.22)}$$

$$Série : \lambda_{c,série} = \left(\frac{f_v}{\lambda_f} + \frac{1 - f_v}{\lambda_{c,aérogel}}\right)^{-1} \quad \text{(III.23)}$$

avec $\lambda_{c,par}$ la conductivité de conduction solide effective du composite à partir du modèle parallèle, $\lambda_{c,série}$ la conductivité de conduction solide effective du composite à partir du modèle série, λ_f la conductivité thermique des fibres, $\lambda_{c,aerogel}$ la conductivité thermique de conduction de l'aérogel de silice et . f_v la fraction volumique de fibres.

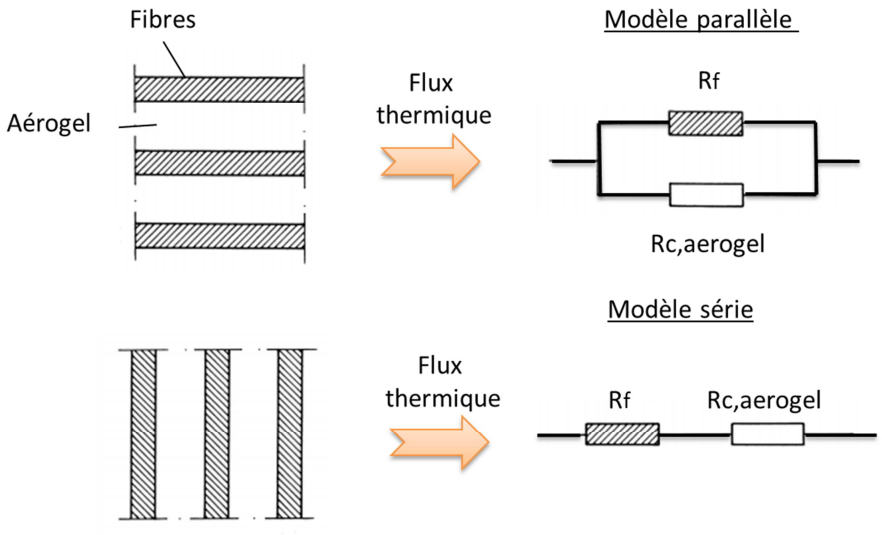


Figure III.5-2: Illustration du modèle série et parallèle pour l'homogénéisation d'un matériau composite biphasique. Rf représente la résistance thermique des fibres et Rc,aérogel la résistance thermique de conduction de l'aérogel

En prenant ensuite en compte les fissures dans le transfert thermique par conduction, le modèle final de conduction peut s'illustrer par l'analogie électrique suivante :

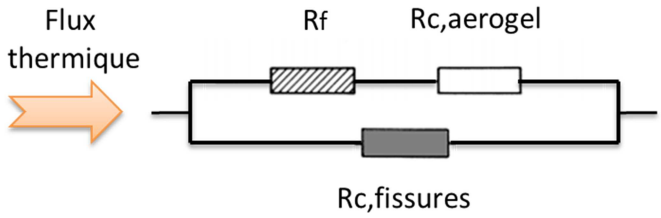


Figure III.5-3: Modèle de conduction thermique du blanket aérogel

Ce modèle considère un *blanket* aérogel pour lequel les fibres sont parfaitement parallèles les unes aux autres et à la phase aérogel, et pour lequel le transfert de chaleur à lieu de façon perpendiculaire aux fibres. Les fissures elles, sont modélisées comme étant dans le même sens que le flux de chaleur, le transfert thermique s'y effectue en parallèle des autres phases.

La conduction thermique du *blanket* en fonction de la fraction volumique de fibre est tracée en Figure III.5-4. Les fibres n'augmentent que très peu la conduction solide du *blanket* , seulement $+1$ $\mathrm{mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$ à 7,5 % de fibres. L'influence du contraste de phase est également très limitée, le type de fibre utilisé pour le renfort mécanique n'a quasiment aucun rôle à jouer dans le transfert thermique tant que la fraction de fibres employée est inférieure à 10 %, et ce même pour des conductivités de fibres élevées. On a tracé en bleu un cas extrême où le contraste de phase $C = 800$, ($\lambda_f = 7{,}5$ $\mathrm{W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$), on observe très peu de variation avec des fibres à faible conductivité thermique comme celles utilisées pour nos *blankets*. La présence de fissures macroscopiques se manifeste par une nette augmentation de la conduction totale du *blanket*. On perd jusqu'à 2,5 $\mathrm{mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$ avec 15 % de fissures.

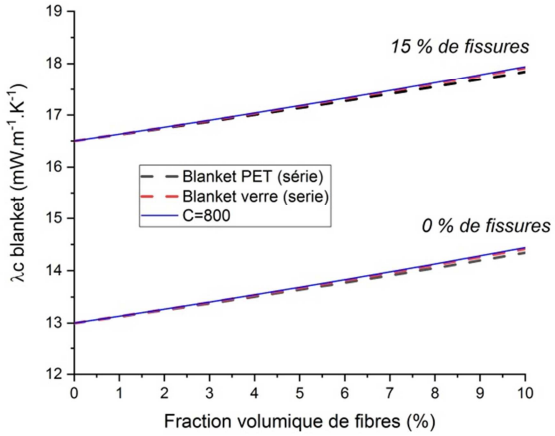


Figure III.5-4: Conductivité thermique de conduction du *blanket* à partir du modèle série

Dans le cas réel, les fibres dans le *blankets* ne sont pas parfaitement perpendiculaires au flux thermique. On a vu sur les clichés MEB et tomographie X que certaines fibres étaient dans le sens transversal et diagonal. Pour prendre en compte ce phénomène, on se propose d'utiliser un modèle série-parallèle (Willye et Southwick [19]) qui tient compte de la proportion de fibres qui conduisent la chaleur dans le sens transverse :

$$\lambda_c = A\lambda_{c,par} + (1 - A)\lambda_{c,série} \tag{III.24}$$

avec A la fraction du transfert de chaleur dans le mode parallèle et $(1 - A)$ la fraction du transfert de chaleur dans le mode série.

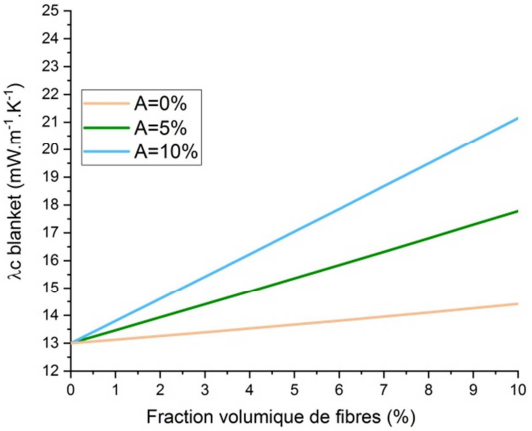


Figure III.5-5 : Conductivité thermique de conduction d'un *blanket* aérogel en fonction de la fraction volumique de fibres. Les courbes sont tracées pour trois cas : A=0 %, A=5 % et A=10 %

La figure ci-dessus montre l'évolution de la conductivité thermique de conduction d'un *blanket* aérogel en fonction de sa fraction volumique de fibres. Le cas A = 0 % est un modèle parfaitement série et constitue la limite théorique basse. La présence d'une quantité de fibres

dans le sens transverse favorise nettement l'accroissement de conductivité thermique de conduction du *blanket*.

III.6 Conductivité radiative

En considérant le *blanket* comme optiquement épais, le transfert radiatif dans le *blanket* peut s'exprimer par l'approximation de Rosseland :

$$\lambda_r = \frac{16n^2\sigma}{3\rho e*_R(T)}T^3 \tag{III.25}$$

avec n l'indice de réfraction du blanket, σ la constante de Stephan-Boltzmann, T la température, ρ la densité apparente du blanket et $e*_R$ l'extinction spécifique effective moyenne de Rosseland du *blanket*.

On calcule l'indice de réfraction du *blanket* à partir de la moyenne volumique pondérée des indices de réfraction des fibres n_f et de l'aérogel n_a:

$$n = f_v n_f + (1 - f_v)n_a \tag{III.26}$$

Les indices de réfraction seront considérés comme constants sur la gamme spectrale des infrarouges et valent respectivement $n_f = 1{,}5$ pour les fibres de verre ou PET et $n_a = 1{,}03$ pour l'aérogel de silice. Parmi les autres paramètres, seule l'extinction spécifique effective moyenne de Rosseland est inconnue.

En considérant qu'aucune réaction chimique n'ait eu lieu entre les fibres et l'aérogel lors de la synthèse, la valeur $e*_R$ du *blanket* s'écrit comme la moyenne massique pondérée des coefficients d'extinction de Rosseland des fibres $e*_{R,f}$ et de l'aérogel de silice $e*_{R,a}$:

$$e*_R = m_a e*_{R,a} + m_f e*_{R,f} \tag{III.27}$$

On rappelle également que l'extinction spécifique moyenne de Rosseland est reliée à l'extinction spécifique effective d'un matériau par la relation :

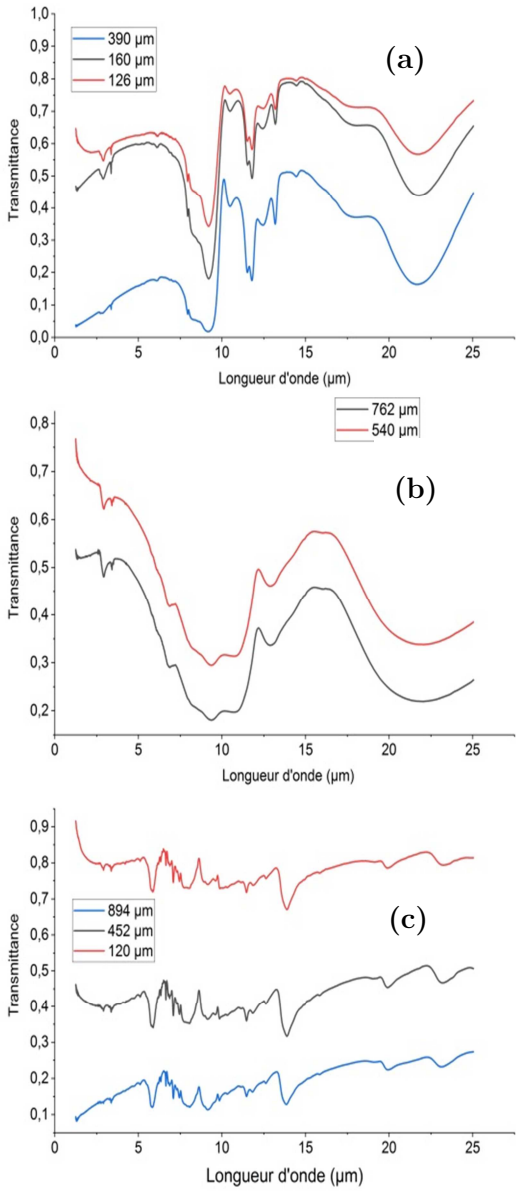
$$\frac{1}{e*_R(T)} = \int_0^\infty \frac{1}{e*(\Lambda)}\frac{\partial E_{b\Lambda}}{\partial E_b}d\Lambda \tag{III.28}$$

avec $e*(\Lambda)$ l'extinction effective spécifique, Λ la longueur d'onde du rayonnement, $E_{b\Lambda}$ est l'émittance monochromatique du corps noir, et E_b l'émittance totale du corps noir.

On a vu dans le chapitre « *Méthodes expérimentales et protocoles de mesure* » que l'extinction spécifique effective $e*(\Lambda)$ d'un matériau à température ambiante se déduisait à partir de mesures en transmission infrarouge et de la loi de Beer :

$$e*(\Lambda) = -\frac{\ln(\tau*)}{\rho d} \tag{III.29}$$

$\tau*$ est la transmittance du matériau d'épaisseur d et de masse volumique ρ. (* indique que la transmittance mesurée tient compte des rayons diffusés sur les détecteurs).



Les mesures de transmittance de la phase aérogel et des fibres de PET et de verre sont tracées en Figure III.6-1 pour différentes épaisseurs entre les longueurs d'onde 1,2 µm et 25 µm avec un appareil FTIR TENSOR 27. Cette gamme de longueurs d'onde correspond à plus de 95 % du transfert radiatif pour des applications à températures intermédiaires (200-900 K), comme le montre la Figure III.6-2 de la fonction de Rosseland normalisée. Les propriétés de transmission de tous les échantillons sont très dépendantes de la longueur d'onde. Chaque type d'échantillon, aérogel de silice, fibres PET ou fibres de verre, suit la même tendance vis-à-vis de la longueur d'onde mais leur transmittance diminue avec l'augmentation de l'épaisseur. On constate que les résultats de transmission infrarouge des aérogels de silice natifs étudiés sont légèrement différents de ceux rencontrés dans la littérature [7], [20]. Le pic absorbant à 9 µm est nettement moins marqué pour l'aérogel de silice étudié que ce que l'on trouve pour un aérogel de silice hydrophile standard. De même, la fenêtre radiative (transmittance élevée) usuellement rencontrée entre 2 et 8 µm n'apparaît pas de manière marquante sur notre graphe. Il se peut que certains additifs aient été ajoutés lors de la synthèse de l'aérogel et aient modifié légèrement les propriétés radiatives infrarouges de l'aérogel de silice étudié.

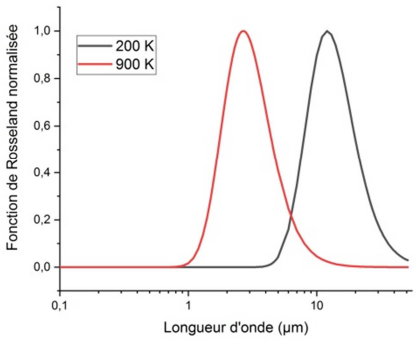


Figure III.6-2: Fonction de Rosseland normalisée à 200 K et à 900 K. Elle décrit la répartition spectrale du transfert radiatif à une température donnée d'après la loi de Planck.

À partir des mesures de transmittance et de l'équation (III.29), on détermine l'extinction effective spécifique spectrale $e*(\Lambda)$ de nos matériaux. Physiquement, ce paramètre représente le taux d'atténuation de l'intensité des rayonnements passant à travers le matériau. Il s'agit d'un paramètre intrinsèque au matériau et indépendant de la densité ou de l'épaisseur. L'extinction effective spécifique de la phase aérogel et des fibres de verre et de PET est présentée en Figure III.6-3. On voit que pour l'aérogel de silice, $e*(\Lambda) < 30\ m^2 \cdot kg^{-1}$ entre 4 et 7 µm et entre 10 et 20 µm, ce qui favorise le transfert radiatif dans la phase aérogel. Les fibres sont plus opaques dans l'infrarouge que l'aérogel avec $e*(\Lambda) > 40\ m^2 \cdot kg^{-1}$ sur toute la gamme spectrale d'importance. Les fibres, de par leur absorption et leur diffusion propre des rayonnements infrarouges améliorent l'opacité globale du *blanket* et réduisent le transfert radiatif. Cette amélioration est d'autant plus marquée lorsque l'utilisation du *blanket* se fait à haute température (glissement de la fonction de Rosseland vers les courtes longueurs d'onde et augmentation de l'énergie transmise).

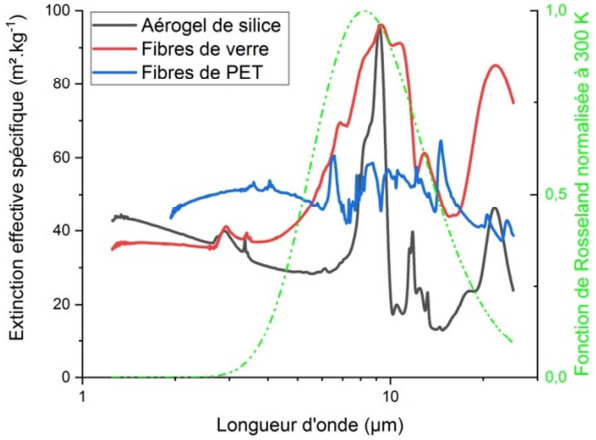


Figure III.6-3: Extinction effective spécifique de l'aérogel de silice, des fibres de verre et des fibres de PET

La dernière étape avant de calculer la conductivité thermique radiative du *blanket* consiste à calculer le coefficient d'extinction spécifique moyen de Rosseland, en approximant l'intégrale entre 1,2 et 25 µm :

$$e *_R (T) \approx \left(\int_{1,2\mu m}^{25\mu m} \frac{1}{e * (\Lambda)} \frac{\partial E_{b\Lambda}}{\partial E_b} d\Lambda \right)^{-1} \quad \text{(III.30)}$$

On trouve alors les coefficients d'extinction de Rosseland de chaque phase que l'on combine entre elles par moyenne pondérée massique pour obtenir les coefficients des *blankets.* Le Tableau III.6-1 récapitule les valeurs de $e *_R$ pour un transfert radiatif à 300 K.

Phase	$e *_R$ **(m² · kg⁻¹) à 300K**	**%m de fibres**
Aérogel de silice	28	
Fibres de verre	71	
Fibres de PET	54	
Blanket		
GF	38	22 %
PET	45	33 %
NGF_6mm/24mm/25mm	53	58 %
NGF_12mm	62	80 %

Tableau III.6-1: Coefficient d'extinction spécifique moyen de Rosseland des *blankets* aérogels étudiés

On voit bien que les fibres jouent un rôle d'opacifiant permettant aux *blankets* d'augmenter leur coefficient d'extinction moyen de Rosseland. Les *blankets* étudiés dans le cadre de la thèse ont pour but l'isolation du bâtiment pour des températures d'utilisation entre -20 et 50 °C. Le transfert radiatif dans le *blanket* n'est alors pas déterminant à ces températures et on peut se contenter de ces valeurs de coefficient de Rosseland qui sont du même ordre de grandeur que ceux des *blankets* CryogelZ (Aspen) ou Thermal Wrap (Cabot) ; respectivement 30,9 $m^2 \cdot kg^{-1}$ et 45 $m^2 \cdot kg^{-1}$ [21]. Pour une application à haute température, il serait préférable d'utiliser des fibres opacifiées, ou de directement opacifier la phase aérogel de silice lors de la synthèse avec du noir de carbone ou du SiC ayant des coefficients $e *_R$ supérieur à 1 000 $m^2 \cdot kg^{-1}$.

Le coefficient de Rosseland des *blankets* a été tracé en fonction de la température sur la Figure III.6-4. Le coefficient de Rosseland décroit avec l'augmentation de la température. Ce résultat s'explique par le fait qu'à haute température, le transfert radiatif se passe dans des longueurs d'onde plus courtes, le rayonnement étant alors bien plus énergétique qu'en plus grandes longueurs d'onde. Pour des températures supérieures à 300 K, on peut affirmer que le coefficient d'extinction moyen de nos *blankets* varie peu avec la température.

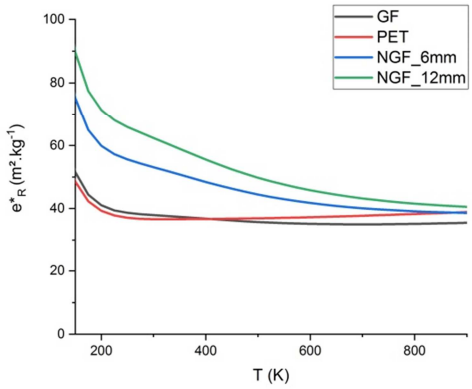


Figure III.6-4: Coefficient d'extinction moyen de Rosseland des *blankets* en fonction de la température

On peut maintenant calculer théoriquement la conductivité radiative des *blankets* étudiés. La Figure III.6-5 montre l'évolution de celle-ci en fonction des fractions massiques et volumiques de fibres, de la température et de la densité. On y a tracé également la conductivité radiative de l'aérogel natif afin de voir l'effet bénéfique des fibres. Aucune donnée expérimentale de conductivité radiative issue de la littérature n'a pu être trouvée étant donné la difficulté d'isoler cette composante par l'expérience. On voit que la conductivité radiative est assez faible à température ambiante comparée aux autres composantes de transfert thermique. Elle représente moins de 10 % du transfert thermique total du *blanket* à T = 300 K et $\rho = 110$ kg · m^{-3}. Cependant, le transfert radiatif augmente lorsque la densité de l'aérogel devient faible. La conductivité radiative croit de façon cubique avec la température (b) et à partir de 500 K, le transfert radiatif devient le mode de transfert thermique prépondérant. L'ajout d'une quantité massique suffisante de fibres de verre permet de réduire drastiquement la conductivité radiative à haute température. Le cas du *blanket* PET est tracé seulement jusqu'à 370 K, en raison de la température de transition vitreuse des fibres PET à cette température. Au-delà, les comportements mécaniques et thermiques du PET diffèrent et nos modèles n'en tiennent pas compte.

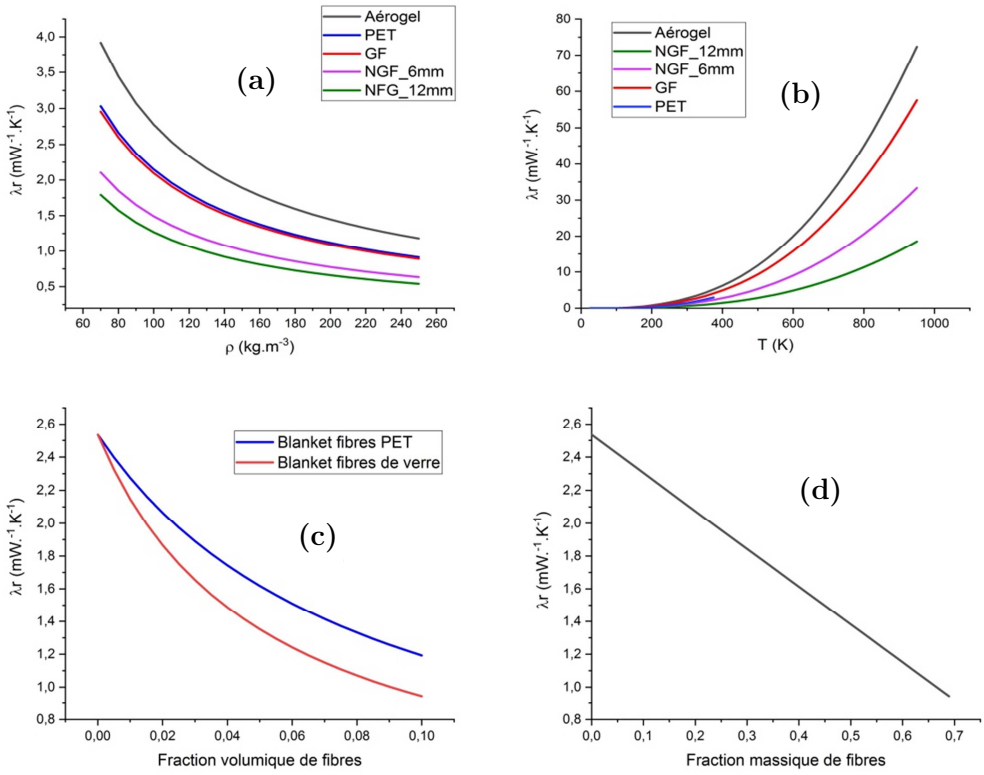


Figure III.6-5: Conductivité radiative des *blanket* étudiés : (a) en fonction de la densité à T=300 K, (b) en fonction de la température à ρ=110 kg · m^{-3}, (c) en fonction de la fraction volumique de fibres à T=300 K et ρ=110 kg · m^{-3}, (d) en fonction de la fraction massique de fibres à T=300 K et ρ=110 kg · m^{-3}

Les figures (c) et (d) ci-dessus représentent l'évolution de la conductivité thermique radiative avec la fraction volumique de fibres et la fraction massique de fibres, respectivement. D'après l'équation (III.27), la conductivité radiative diminue de manière linéaire avec la fraction massique de fibres (ou d'opacifiant dans le cas général). Dans notre cas bien précis, l'influence de la fraction massique des fibres PET ou des fibres de verre est quasiment identique. Pour les deux types de fibres, la figure (d) permet de modéliser l'influence de la fraction massique sur la conductivité radiative. Compte tenu de la différence de densité propre entre les fibres PET et les fibres de verre, l'évolution de λ_r avec la fraction volumique diffère légèrement. Les fibres de verre sont plus denses et vont donc opacifier mieux que les fibres PET à fraction volumique égale.

Effet d'épaisseur

La formule de Rosseland utilisée pour calculer la conductivité radiative ne s'applique que dans le cas d'un isolant optiquement épais. Or, en toute rigueur ce n'est pas le cas aux frontières de l'isolant et l'émissivité même des conditions limites de mesure influe sur la conductivité radiative du matériau. On appelle cet effet « effet d'épaisseur », il dépend du coefficient d'extinction effectif de Rosseland du matériau ainsi que de son épaisseur. Cet effet a été

observé par les chercheurs de l'ASTM[10] sur des laines isolantes à faible densité dont la conductivité thermique mesurée dépendait de l'épaisseur. On se propose ici de vérifier l'importance de cet effet pour les *blankets* aérogels de silice étudiés. Pour cela on peut utiliser l'approximation de Rosseland modifiée qui tient compte des conditions limites d'émissivité ε.

$$\lambda_r = \frac{16n^2\sigma.d}{3E*_R(T).d + 4(\frac{1}{\varepsilon_1}+\frac{1}{\varepsilon_2}-1)}T^3 \qquad \text{(III.31)}$$

On voit apparaître dans cette formule l'épaisseur de l'échantillon d qui influence la conductivité radiative du *blanket*. Le terme $E*_R$ (m^{-1}) est le coefficient d'extinction effectif de Rosseland du matériau, produit de la densité du matériau et de l'extinction spécifique effective de Rosseland ($E*_R = \rho e*_R$), il apparaît comme l'inverse de la distance moyenne parcourue par un photon monochromatique dans le matériau pondéré par la dérivée de la luminance du corps noir par rapport à T.

Pour notre étude, on considère une température T = 300 K et une émissivité aux bornes de l'échantillon $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 0{,}9$. On fait varier les coefficients d'extinction effectifs de Rosseland de 500 m^{-1} à 6000 m^{-1}. Les cas $E*_R$ = 4000 m^{-1} et 6000 m^{-1} correspondent respectivement au *blanket* GF (22 % de fibres en masse) et NGF_12 mm (80 % de fibres en masse). Le cas $E*_R$ = 2000 m^{-1} correspond à la phase aérogel de silice synthétisée dans le cadre de la thèse. Le cas $E*_R$ = 1000 m^{-1} correspond à un aérogel de silice natif très léger (ρ = 50 $kg \cdot m^{-3}$). Enfin $E*_R$ = 500 m^{-1} ne correspond à aucun aérogel, mais est donné à titre d'exemple pour illustrer l'effet d'épaisseur. On a tracé en pointillé la conductivité radiative calculée sans tenir compte de l'effet d'épaisseur. On voit bien que l'effet d'épaisseur est important uniquement pour des matériaux très peu denses avec un faible coefficient d'extinction effectif. Dans le cas des aérogels couramment rencontrés ρ = 70-250 $kg \cdot m^{-3}$, même non opacifiés, l'effet d'épaisseur reste négligeable. Cependant, même si cet effet est négligeable à température ambiante, l'effet d'épaisseur apparaît de façon plus marquée pour les hautes températures.

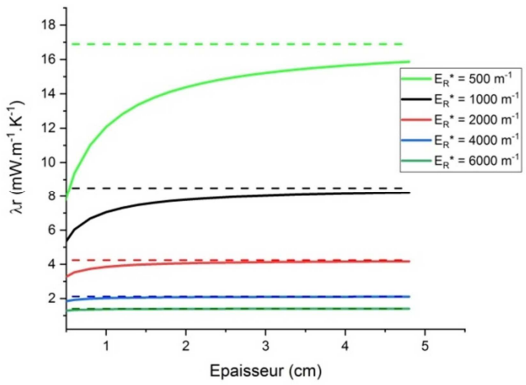


Figure III.6-6: Effet d'épaisseur sur le calcul de la conductivité radiative d'un matériau à 300 K, les pointillés représentent le calcul de conductivité radiative en négligeant l'effet d'épaisseur.

[10] American Society for Testing Material

III.7 Conductivité thermique effective

Pour le calcul de conductivité thermique effective, on considère un volume élémentaire représentatif du *blanket* étudié (VER) dans lequel la proportion de chacune des phases est représentative du *blanket* à l'échelle macroscopique. Ce VER est représenté sur la Figure III.7-1a, le transfert de chaleur qui a lieu dans le VER se divise en quatre composantes :
Une composante de conduction à travers la phase aérogel, une composante de conduction solide à travers les fibres, une composante de conduction gazeuse à travers les fissures et une composante de rayonnement à travers tout le VER.
Le VER est constitué de la phase aérogel sous forme fracturée, des fissures et des fibres qu'on considèrera comme perpendiculaires au flux de chaleur. Le VER de la phase aérogel est détaillé sur la Figure III.7-1, il est composé de nanoparticules de silice et de mésopores qui transmettent respectivement le flux de chaleur par conduction solide et conduction gazeuse. À cela s'ajoute le couplage solide/gaz aux abords des nanoparticules de silice qui accentuent le transfert du flux thermique dans l'aérogel. On ne mentionne pas le transfert par rayonnement dans le VER de l'aérogel car celui-ci est déjà pris en compte de façon globale dans le VER du *blanket.* À partir du VER réel du matériau étudié, on peut modéliser un VER simplifié en respectant les proportions des contributions au flux thermique des phases en présence (Figure III.7-1b). Lors du passage du VER réel au VER simplifié, on considère que l'interaction entre les fibres et les fissures est négligeable d'un point de vue thermique.
On peut alors modéliser par analogie électrique la résistance thermique totale du *blanket* comme un agencement série/parallèle (Figure III.7-1c).
Le flux thermique total s'écrit donc :

$$\begin{gathered}\phi_{tot} = \phi_r + \phi_{g,fissures} + \phi_{c,aérogel+fibres} \\ \phi_{c,aérogel} = \phi_g + \phi_{cs} + \phi_{coupl}\end{gathered} \tag{III.32}$$

En considérant un gradient ΔT de part et d'autre du VER on a :

$$\begin{gathered}\frac{\Delta T}{R_{tot}} = \frac{\Delta T}{R_r} + \frac{\Delta T}{R_{g,fissures}} + \frac{\Delta T}{R_{c,aérogel} + R_f} \\ \frac{\Delta T}{R_{c,aerogel}} = \frac{\Delta T}{R_g} + \frac{\Delta T}{R_{cs}} + \frac{\Delta T}{R_{coupl}}\end{gathered} \tag{III.33}$$

Enfin, en utilisant la loi de Fourier dans le VER de dimension caractéristique Δx dans le sens du transfert de chaleur, on obtient :

$$\begin{gathered}\frac{\Delta T}{\Delta x}\lambda_{eff} = \frac{\Delta T}{\Delta x}\left(\lambda_r + \lambda_{g,fissures} + \left(\frac{1-f_v}{\lambda_{c,aérogel}} + \frac{f_v}{\lambda_f}\right)^{-1}\right) \\ \frac{\Delta T}{\Delta x}\lambda_{c,aérogel} = \frac{\Delta T}{\Delta x}\left(\lambda_g + \lambda_{cs} + \lambda_{coupl}\right)\end{gathered} \tag{III.34}$$

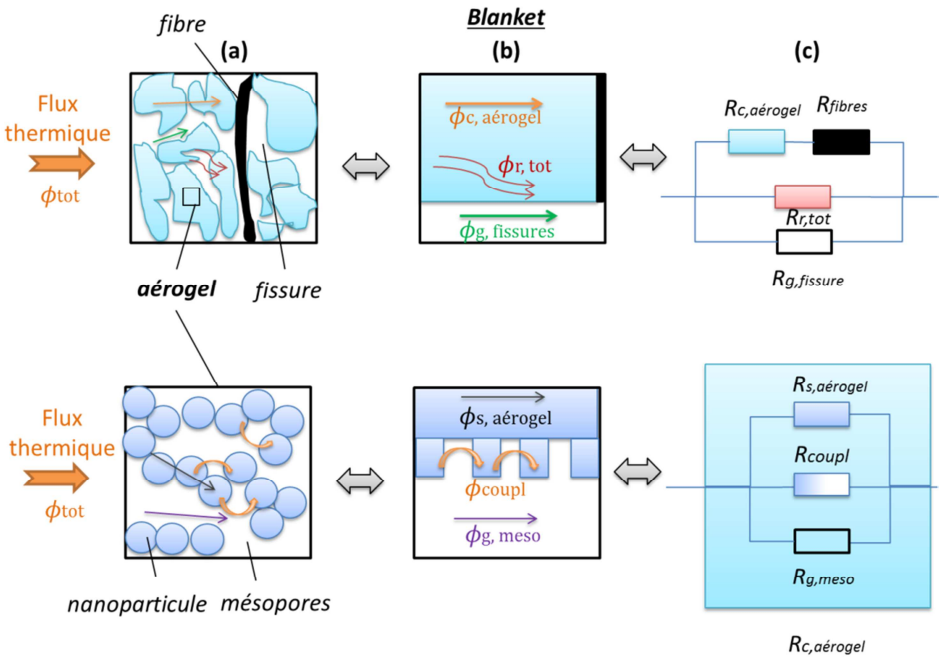


Figure III.7-1 : Volume élémentaire représentatif du *blanket* aérogel et de la phase aérogel seule : a) Cas réel, b) Cas simplifié, c) Modèle de transfert thermique par analogie électrique

Les équations (III.34) permettent de calculer la conductivité thermique effective du matériau connaissant chacune des contributions. L'évolution de la conductivité thermique effective des différents *blankets* étudiés est donnée en Figure III.7-2. Le modèle prend en compte tous les paramètres décrits précédemment dans le chapitre. Pour la Figure III.7-2, on considère des *blankets* ayant 10 % de fissures (*blankets* à la sortie du moule de fabrication non fracturé par leur manipulation), une densité de la phase aérogel de 110 $kg \cdot m^{-3}$, et une température de 300 K. Le réseau de silice est constitué de nanoparticule de diamètre 15 nm et le réseau poreux de l'aérogel contient des pores de taille moyenne 45 nm. Le couplage est pris en compte à l'aide du facteur de couplage calculé à partir du modèle de Bi. Celui-ci est considéré comme constant et égal à 1,9. Les *blankets* GF contiennent environ 1-1,5 %vol de fibres, les *blankets* PET 2,5 %vol et les NGF 3 à 5 %vol selon l'épaisseur du mat initial (Voir le détail dans le chapitre *Caractérisation*). On voit en Figure III.7-2a, la dépendance de la conductivité thermique effective des *blankets* à la densité du matériau, le cas aérogel natif y est également représenté. D'après nos modèles, la dépendance à la densité ne dépend que peu du type de fibres utilisées avec une dispersion d'environ 0,8 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. On retrouve une fois de plus une courbe concave avec un minimum de conductivité thermique effective autour de 140 $kg \cdot m^{-3}$. Lorsque la densité de la phase aérogel est faible le transfert radiatif devient prépondérant et lorsque densité est élevée, le squelette de silice devient plus présent et la conduction solide augmente. On observe un décalage d'environ +2 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ entre l'aérogel natif et les *blankets* qui est dû à la présence de fibres, mais surtout à la présence de fissures.

La Figure III.7-2b décrit l'augmentation de la conductivité thermique avec la température. À haute température, le transfert radiatif devient important, il est proportionnel à la température

au cube. Le cas du PET n'est pas représenté car les fibres PET ne sont pas faites pour être utilisées à haute température. À température ambiante et jusqu'à 400 K, le transfert radiatif dans les *blankets* est faible et il est du même ordre de grandeur que celui dans l'aérogel de silice natif. Au-delà de 400 K, le pouvoir opacifiant des fibres – que ce soit par absorption ou diffusion – permet de limiter l'augmentation du transfert radiatif. Cette limitation reste relativement modérée pour les *blankets* GF avec 22 % de fibres en masse, mais devient conséquente pour le *blanket* NGF_12mm avec ses 80 % de fibres en masse. L'augmentation de la conductivité solide (squelette ou fibres) avec la température est quant à lui négligeable devant le transfert radiatif.

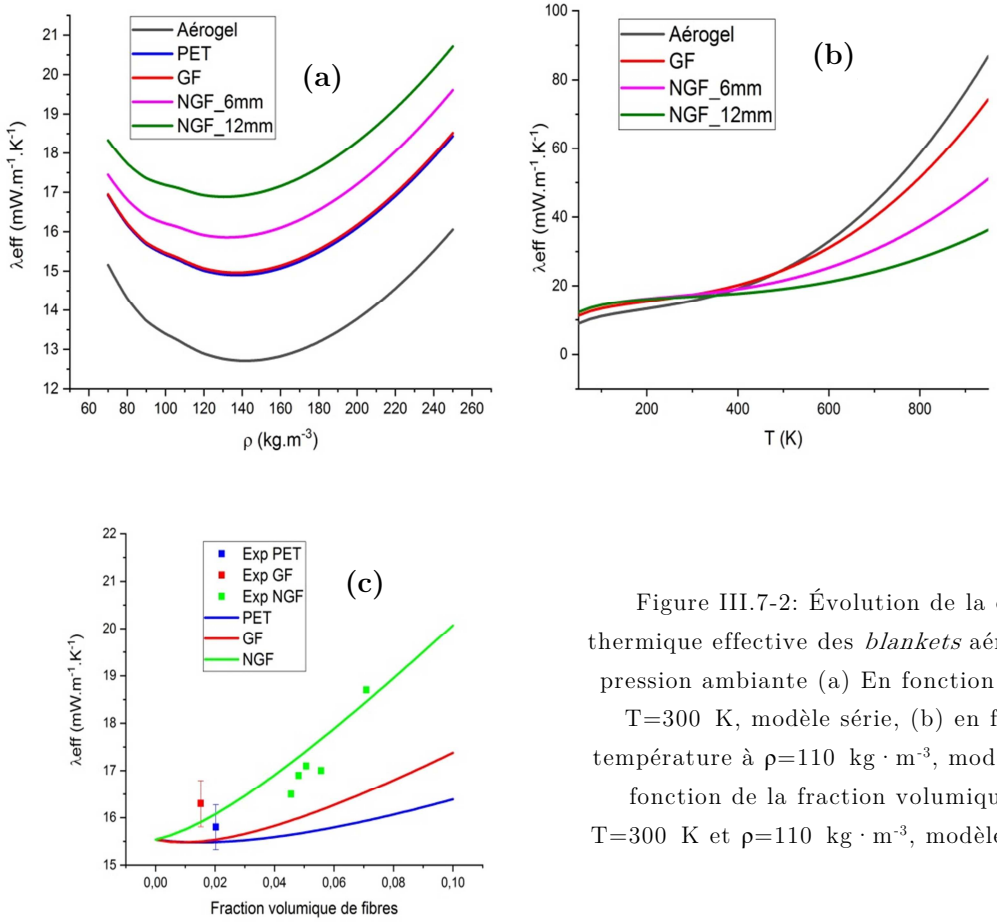


Figure III.7-2: Évolution de la conductivité thermique effective des *blankets* aérogels de silice à pression ambiante (a) En fonction de la densité à T=300 K, modèle série, (b) en fonction de la température à ρ=110 kg · m^{-3}, modèle série, (c) En fonction de la fraction volumique de fibres à T=300 K et ρ=110 kg · m^{-3}, modèle série-parallèle.

La Figure III.7-2c décrit l'évolution de la conductivité thermique effective des *blankets* avec la proportion volumique de fibres en utilisant le modèle de Willye et Southwick. Le paramètre clé de ce modèle est le facteur A qui correspond à la proportion de fibres qui transporte la chaleur dans le mode parallèle. Ce paramètre est délicat à déterminer, on l'approxime alors à la fraction de fibres dans le sens transverse. À partir de nos analyses MEB et tomographie X, on estime que A = 3 % pour les *blankets* GF et PET, et A = 7 % pour les *blankets* NGF due à la présence de fibres aiguilletées. Il existe une plage optimale pour laquelle la quantité de fibres minimise la conductivité thermique effective du *blanket* situé autour de 1 % à 300 K pour les *blankets* GF et PET. Ce minima tient au fait qu'un surplus de fibres conduirait à

l'augmentation du nombre de chemins phononiques à travers les fibres, ayant pour effet d'augmenter la conduction solide, mais qu'à contrario, l'ajout de trop peu de fibres ne permettrait pas de bénéficier de l'effet opacifiant des fibres. Ce minima dépend en fait de la température d'utilisation du *blanket* ; à plus haute température celui-ci glisserait vers des fractions de fibres plus importantes. La présence de fibres aiguilletées dans les *blankets* NGF augmente de façon significative le transport de chaleur du mode parallèle et donc la conduction effective du matériau en fonction de la fraction de fibres. Nous avons ajouté pour ce dernier graphe les données expérimentales issues des mesures de caractérisation. Les fractions volumiques de fibres utilisées ont été déterminées avec précision par les analyses tomographiques à rayons X, et la conductivité thermique effective a été mesurée avec le FOX 150. Le modèle de conductivité thermique effective des *blankets* donne des résultats proches des valeurs expérimentales. Néanmoins, nous disposons de peu de données expérimentales pour tester efficacement nos modèles. Dans le cas présent nous n'avons pas la maîtrise d'œuvre sur la fabrication des mats fibreux, mais il serait intéressant d'effectuer une étude paramétrique de conductivité thermique effective en fonction des propriétés du mat fibreux

Enfin, sur tous les graphes de conductivité thermique effective présentés, les modèles prédisent des valeurs inférieures aux valeurs mesurées par l'expérimentation, que ce soient celles issues de nos mesures ou celles données dans la littérature. Cela s'observe bien sur la courbe en densité de l'aérogel de silice natif qui atteint une conductivité thermique effective de $12{,}7\ \mathrm{mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$; or aucun aérogel de silice natif n'a été recensé avec une aussi faible conductivité thermique dans la littérature. Cela semble venir de la trop faible considération du couplage de notre modèle, le facteur de 1,9 calculé théoriquement conduit à sous-évaluer la conduction gazeuse et donc la conductivité thermique effective. À titre de comparaison, celui-ci avait été calculé à 2,5 lors du « *fit* » des données expérimentales avec le modèle de conductions gazeuse. Avec un facteur de 2,5 on retrouve un modèle plus cohérent avec les données de la littérature.

III.8 Conductivité thermique du blanket humide

Les modèles de conductivité thermique présentés précédemment sont valables pour un matériau sec uniquement. Néanmoins, on a vu que l'humidité jouait un rôle important dans le transfert de chaleur des isolants et pouvait augmenter de façon considérable le transfert thermique. Le modèle choisi pour tenir compte de l'humidité environnante est un modèle empirique basé sur la corrélation linéaire observée entre la teneur en eau massique u et la conductivité thermique effective du matériau (voir Figure III.8-1) :

$$\lambda^{*}_{eff} = \lambda_{sec} + K_H u \tag{III.35}$$

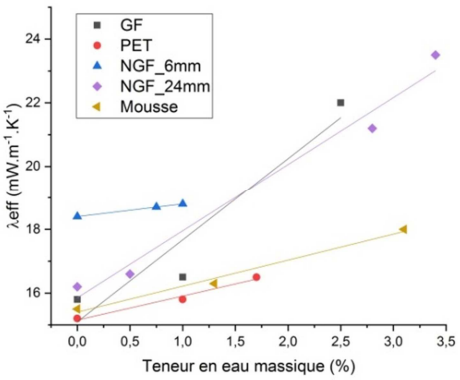


Figure III.8-1 : Corrélation linéaire entre la teneur en eau massique et la conductivité thermique effective des *blankets*

Les valeurs du coefficient de proportionnalité K_H sont données dans le tableau ci-dessous :

***Blanket* aérogel**	K_H ($mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$/%masse d'eau adsorbée)
GF	2,57
PET	0,75
NGF_6mm	0,4
NGF_24mm	2,1
Mousse	0,82

Tableau III.8-1 : Coefficient de proportionnalité entre conductivité thermique humide et teneur en eau massique

Les coefficients de proportionnalité varient entre 0,4 et 2,57 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$/(%masse d'eau adsorbée). Il ne faut cependant pas oublier que la mesure de conductivité thermique d'un matériau humide est très délicate en raison de la teneur en eau non-uniforme et de son évolution dynamique au cours de la mesure même. Cela affecte en particulier les échantillons de faible épaisseur et c'est ce qu'on peut vérifier sur le graphique ci-dessus où l'on peut voir des pentes très différentes entre les échantillons fins et les échantillons épais (NGF_24mm et GF_30mm). Comme mentionné dans la partie « *caractérisation* » la valeur de K_H des échantillons les plus épais fait office de valeur de référence.

III.9 Conclusion

Dans cette partie, des modèles analytiques de conductivité thermique ont été mis en place pour les *blankets* aérogels étudiés. Pour la phase aérogel, ces modèles font intervenir les modèles classiques de conductivité thermique des aérogels de silice de la littérature. À cela s'ajoute la prise en compte du couplage entre transfert par conduction gazeuse et transfert par conduction solide observé plus récemment dans la littérature des transferts thermiques de matériaux poreux nanostructurés. Ce couplage, encore méconnu et rarement modélisé, intervient de façon conséquente dans le transfert thermique de l'aérogel de silice. La conductivité thermique peut être sous-estimée d'un facteur 2 en négligeant ce phénomène. À partir des modèles analytiques de couplage de la littérature, nous avons montré que le calcul de conduction gazeuse de la phase aérogel incluant l'effet de couplage pouvait se rapporter à un terme de conduction gazeuse calculé à partir de la loi de Knudsen multiplié par un facteur de couplage. Ce facteur de couplage a été calculé à 2,5 pour les aérogels de silice étudiés. L'utilisation des caractérisations de conductivité thermique à faible pression nous a permis d'identifier ce facteur de couplage ainsi que les paramètres texturaux de la phase mésoporeuse et des fissures. Les résultats d'identification nous ont permis de conclure que les *blankets* étaient constitués d'un réseau de pores trimodal avec des pores mésoporeux de taille nanométrique, des pores intermédiaires de l'ordre du micron, et des macropores de l'ordre de la centaine de microns voire du millimètre. Le traitement du transfert radiatif à travers le *blanket* fait intervenir une loi des mélanges à partir des propriétés d'extinction des phases en présence. Ces propriétés d'extinction ont été obtenues expérimentalement par analyse infrarouge à transformée de Fourier.

Pour le modèle de conductivité thermique effective, chaque phase est prise en compte en utilisant un modèle série/parallèle par analogie électrique. En particulier, la prise en compte de la conduction des fibres dans le modèle fait intervenir le modèle série/parallèle de Wyllie et Southwick. Chaque composante du transfert thermique ainsi que la conductivité thermique effective du *blanket* a été tracée en fonction des paramètres externes tels que la pression, la température et l'humidité relative afin de prédire le comportement des *blankets* dans différents types d'environnement et de cibler des applications potentielles. De même, l'influence des paramètres intrinsèques du *blanket* permet d'orienter sa synthèse vers telle ou telle autre application en fonction de propriétés thermiques recherchées.

Le chapitre suivant est consacré à l'étude d'un système isolant intégrant le *blanket* aérogel NGF. Le système d'isolation est caractérisé par des mesures expérimentales en cellule test, en conditions climatiques réelles.

RÉFÉRENCES

[1] G. Reichenauer, U. Heinemann, and H.-P. Ebert, 'Relationship between pore size and the gas pressure dependence of the gaseous thermal conductivity', *Colloids Surf. Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 300, no. 1–2, pp. 204–210, Jun. 2007.

[2] F. Hemberger, S. Weis, G. Reichenauer, and H.-P. Ebert, 'Thermal Transport Properties of Functionally Graded Carbon Aerogels', *Int. J. Thermophys.*, vol. 30, no. 4, pp. 1357–1371, Aug. 2009.

[3] K. Swimm, G. Reichenauer, S. Vidi, and H.-P. Ebert, 'Gas pressure dependence of the heat transport in porous solids with pores smaller than 10 µm', *Int. J. Thermophys.*, vol. 30, no. 4, pp. 1329–1342, 2009.

[4] J.-J. Zhao, Y.-Y. Duan, X.-D. Wang, and B.-X. Wang, 'Effects of solid–gas coupling and pore and particle microstructures on the effective gaseous thermal conductivity in aerogels', *J. Nanoparticle Res.*, vol. 14, no. 8, Aug. 2012.

[5] C. Dames and G. Chen, 'Theoretical phonon thermal conductivity of Si/Ge superlattice nanowires', *J. Appl. Phys.*, vol. 95, no. 2, pp. 682–693, Jan. 2004.

[6] Scheuerpflug P., Hauck M., and Fricke J., 'Thermal properties of silica aerogels between 1.4 and 330 K', *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 145, pp. 196–201, 1992.

[7] G. Wei, Y. Liu, X. Zhang, F. Yu, and X. Du, 'Thermal conductivities study on silica aerogel and its composite insulation materials', *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 54, no. 11–12, pp. 2355–2366, May 2011.

[8] J. Fricke, X. Lu, P. Wang, D. Büttner, and U. Heinemann, 'Optimization of monolithic silica aerogel insulants', *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 35, no. 9, pp. 2305–2309, 1992.

[9] P. Scheuerpflug, H.-J. Morper, and G. Neubert, 'Low-temperature thermal transport in silica aerogels', *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 24, no. 8, p. 1395, 1991.

[10] K. Kamiuto, 'Combined conductive and radiative heat transfer through evacuated silica aerogel layers', *Int. J. Sol. Energy*, vol. 9, no. 1, pp. 23–33, 1990.

[11] C. Bi, G. H. Tang, Z. J. Hu, H. L. Yang, and J. N. Li, 'Coupling model for heat transfer between solid and gas phases in aerogel and experimental investigation', *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 79, pp. 126–136, Dec. 2014.

[12] S. Zhao, B. Zhang, and X. He, 'Temperature and pressure dependent effective thermal conductivity of fibrous insulation', *Int. J. Therm. Sci.*, vol. 48, no. 2, pp. 440–448, 2009.

[13] S. Q. Zeng, A. Hunt, and R. Greif, 'Transport properties of gas in silica aerogel', *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 186, pp. 264–270, Jun. 1995.

[14] K. Swimm, S. Vidi, G. Reichenauer, and H.-P. Ebert, 'Coupling of gaseous and solid thermal conduction in porous solids', *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 456, pp. 114–124, Jan. 2017.

[15] K. Swimm, G. Reichenauer, S. Vidi, and H.-P. Ebert, 'Impact of thermal coupling effects on the effective thermal conductivity of aerogels', *J. Sol-Gel Sci. Technol.*, vol. 84, no. 3, pp. 466–474, Dec. 2017.

[16] G. W. Milton, 'The theory of composites (Cambridge monographs on applied and computational mathematics)', 2002.

[17] M. Sahimi, *Heterogeneous Materials: Nonlinear and breakdown properties and atomistic modeling*, vol. 2. Springer Science & Business Media, 2003.

[18] M. Kaviany, 'Principles of heat transfer in porous media. Springer, New York.', *Princ. Heat Transf. Porous Media Springer N. Y.*, 1991.

[19] M. Wyllie, P. Southwick, and others, 'An experimental investigation of the SP and resistivity phenomena in dirty sands', *J. Pet. Technol.*, vol. 6, no. 02, pp. 44–57, 1954.

[20] X.-D. Wang, D. Sun, Y.-Y. Duan, and Z.-J. Hu, 'Radiative characteristics of opacifier-loaded silica aerogel composites', *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 375, pp. 31–39, Sep. 2013.

[21] A. Hoseini, C. McCague, M. Andisheh-Tadbir, and M. Bahrami, 'Aerogel blankets: From mathematical modeling to material characterization and experimental analysis', *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 93, pp. 1124–1131, Feb. 2016.

IV. Expérimentation à l'échelle du système

Table des matières

Introduction 222

IV.1.Description du système d'isolation et de la cellule thermique 223

IV.1.1. Système d'isolation 223
IV.1.2. Cellule thermique 224

IV.1.2.a. Description de la cellule 224
IV.1.2.b. Instrumentation de la cellule thermique 225

i. Station météo 225
ii. Rayonnement solaire global vertical 226
iii. Capteurs de température et d'humidité 226
iv. Densité de flux thermique 226
v. Ambiance intérieure 226
vi. Système d'acquisition 227

IV.1.2.c. Position des capteurs 227
IV.1.2.d. Utilisation des multiples capteurs pour obtenir une valeur unique de température et premiers résultats 228

IV.2.Méthodologie de la campagne de mesure 232

IV.2.1. Critère de performances intrinsèques 232

IV.2.1.a. Coefficient de transmission thermique *U-value* 232
IV.2.1.b. Coefficient de transmission solaire *g-value* 232
IV.2.1.c. Capacité thermique effective C 233
IV.2.1.d. Facteur d'amortissement f et déphasage ϕ 233

IV.2.2. Critères de performance sur la consommation énergétique et le confort 234

IV.2.2.a. Flux thermique sur la surface intérieure Q 234
IV.2.2.b. Besoin en énergie finale : chauffage et refroidissement 234
IV.2.2.c. Confort thermique 235

IV.2.3. Acquisition et traitements des données 236

IV.3.Méthodes pour l'estimation des paramètres caractéristiques d'une cellule thermique 240

IV.3.1. Introduction 240
IV.3.2. Méthode du régime permanent 242

IV.3.2.a. « Average method » 243
IV.3.2.b. Prise en compte du rayonnement 243

IV.3.3. Méthodes dynamiques....244

IV.3.3.a. Equations différentielles ordinaires....244

IV.3.3.b. Equations différentielles stochastiques....246

IV.3.3.c. Validation des modèles utilisés pour l'identification des paramètres via les méthodes dynamiques....248

IV.4.Résultats expérimentaux de la campagne de mesure....250

IV.4.1. Déperditions thermiques et coefficient de transfert thermique du mur test....250

IV.4.2. Identifications des paramètres secondaires de la cellule thermique....256

IV.4.1. Déphasage et facteur d'amortissement....258

IV.4.2. Confort thermique....261

IV.5.Conclusion 264

REFERENCES....267

Introduction

Le chapitre de caractérisation nous a permis de porter notre choix sur l'isolant NGF, qui possède les meilleures propriétés physiques pour un emploi dans l'isolation thermique du bâtiment. Bien que légèrement moins performant d'un point de vue thermique que d'autres *blankets* aérogels testés, il reste tout de même un super-isolant avec une conductivité thermique moyenne de 0,017 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Ses propriétés mécaniques en cohésion et en flexion en font l'un des *blankets* aérogels super-isolants les plus résistants, grâce à son mat de fibres aiguilleté. Enfin, la présence de fibres de verre en tant que matrice lui confère une meilleure résistance au feu, et une mise en forme (découpage notamment) bien plus aisée qu'avec des fibres PET.

Dans le présent chapitre, nous étudierons un système d'isolation intérieur basé sur ce *blanket* NGF que nous testerons en conditions climatiques réelles. Les performances énergétiques réelles d'une paroi après construction ou réhabilitation peuvent différer significativement de leur performance théorique prévue lors de la phase de conception. De ce fait, les essais *in situ* en cellule test sont d'un intérêt capital pour tester les composants de bâtiment et caractériser leurs vraies performances thermiques et énergétiques.

La première partie de chapitre décrit le système d'isolation ainsi que la cellule test dans laquelle les essais ont eu lieu. La seconde partie décrit la méthodologie de la campagne de mesures et les critères de performances thermiques et énergétiques étudiés. La troisième partie est consacrée aux méthodes utilisées pour l'estimation des paramètres caractéristiques d'une cellule test à partir de mesures expérimentales. Une dernière partie est consacrée aux résultats des campagnes de mesures de la cellule test et à la validation de ces résultats.

IV.1 Description du système d'isolation et de la cellule test

IV.1.1. Système d'isolation

Le système d'isolation étudié est un système d'isolation intérieur conçu par la société Trocellen [1]. Il a pour but de réduire les déperditions thermiques et les nuisances sonores pour les bâtiments résidentiels et tertiaires. La Figure IV.1-1 décrit la stratigraphie du système, de l'extérieur vers l'intérieur :

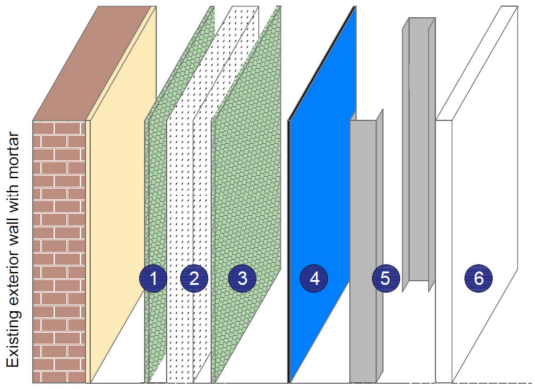


Figure IV.1-1: Stratigraphie du système d'isolation intérieur

Le système est composé de 6 couches :

- La couche 2 représente le *blanket* NGF, il se présente sous forme de panneaux 30 cm x 40 cm, d'épaisseur 25 mm. Sa conductivité thermique a été caractérisée à 0,0165 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ en laboratoire.
- Les couches 1 et 3 sont des couches de polyéthylène réticulé qui viennent prendre en sandwich le *blanket* NGF et permettent de protéger l'isolant des chocs et de la poussière.
- La couche 4 est constituée d'un matériau polymère rempli de matériau minéral dense (ISOLMass[11]). Elle permet de réduire l'énergie acoustique et de bloquer le transfert de vapeur d'eau. Cette couche agit comme un isolant acoustique et un pare-vapeur.
- La couche 5 est une lame d'air ayant deux objectifs : d'une part, elle offre un espace utile pour les systèmes électriques, et d'autre part elle permet de faciliter la migration de vapeur d'eau. L'épaisseur de cette lame d'air dépend de la configuration du mur, de préférence entre 25 mm et 50 mm pour minimiser le transfert convectif.
- La couche 6 est la couche de finition intérieure, constituée de plaques de plâtre.

L'ensemble des couches mur-1-2-3-4 est collé avec de la colle polyuréthane, et les couches 5-6 sont fixées mécaniquement. Les propriétés thermophysiques de chacune des couches ainsi que leur épaisseur sur site sont détaillées dans le Tableau IV.1-1. On notera la présence d'une lame

[11] https://insulation.trocellen.com/fr/applications/sound-insulation-walls-roofs/isolmass-22/

d'air de 15 cm, d'épaisseur supérieure aux recommandations précédentes. Celle-ci est due à la configuration particulière de notre cellule et à l'utilisation de profils métalliques (couche 5) déjà sur place. Des informations complémentaires sur les propriétés du système d'isolation pourront être trouvées en Annexe 2.

Couche de matériau	**Conductivité thermique ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$)**	**Épaisseur (cm)**	**Densité ($kg \cdot m^{-3}$)**	**Chaleur spécifique ($J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$)**
PE (1)	0,037	0,3	28	800
Blanket NGF (2)	0,0165	2,5	200	800
PE (3)	0,037	0,3	28	800
ISOLMass (4)	0,587	0,2	2000	
Lame d'air (5)		15	1	1000
Plaque de plâtre (6)	0,32	2,5	790	800

Tableau IV.1-1 : Propriétés thermophysiques du système d'isolation

IV.1.2. Cellule test

IV.1.2.a Description de la cellule

La conception de la cellule test est issue des travaux de thèse de G. Krauss [2]. Les plans de la cellule à la construction sont donnés en Annexe 3. Initialement, celle-ci était constituée de deux pièces adjacentes : une pièce nord de 19 m^2 accueillant tout le matériel nécessaire à l'acquisition des données et au pilotage de l'expérience, et une pièce Sud de 22 m^2, indépendante de la première, dans laquelle étaient effectuées les mesures. Le mur Sud et la cloison Nord/Sud sont constitués de 25 cm de béton, le reste des parois étant des murs légers sans masse, fortement isolés.

Par la suite, la pièce Sud a été divisée en deux cellules de dimensions égales par une cloison Est/Ouest fortement isolée afin de pouvoir étudier deux composants de bâtiment simultanément et indépendamment. La cellule Ouest a permis de mener des expériences sur une paroi associant un matériau à changement de phase et une super-isolation transparente à base d'aérogel de silice (Voir la thèse de Y.Berhtou [3]). La cellule Est a permis l'étude d'un enduit minéral extérieur à base d'aérogel de silice et a mené aux travaux de thèse de M.Ibrahim [4].

Notre système d'isolation intérieur a été intégré sur le mur Sud de la cellule Est comme on peut le voir sur la Figure IV.1-2. On peut voir également sur cette figure une vue extérieure de la cellule depuis le Sud, avec la paroi à changement de phase à gauche (cellule Ouest) et l'enduit super-isolant à droite (cellule Est). Avant la pose du système d'isolation en juillet 2017, le mur

test exposé au sud était constitué d'un enduit isolant extérieur de 4 cm et d'une couche de béton de 25 cm. Le détail de la composition de chacune des parois de la cellule pourra être trouvé en Annexe 3.

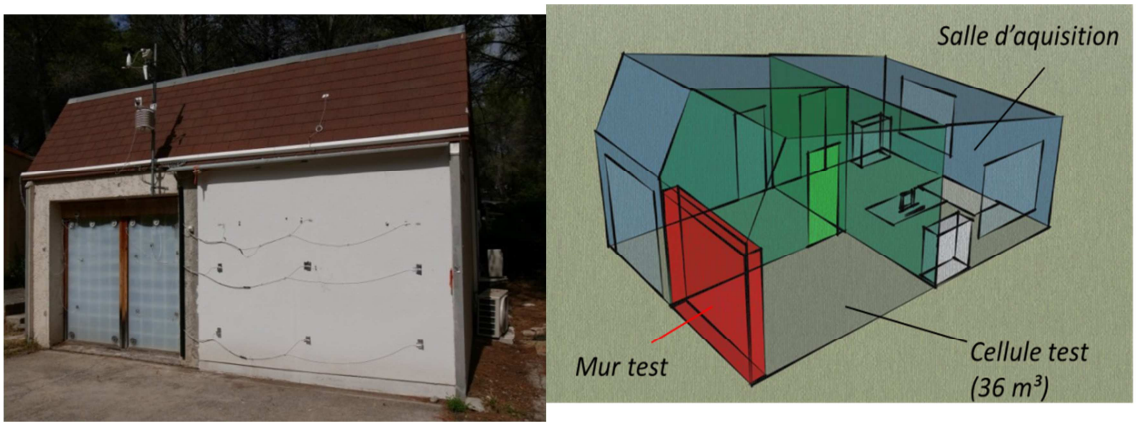


Figure IV.1-2 : (gauche) Vue extérieure de la cellule test, (droite) Modélisation 3 D de la cellule test. Sur l'image, on peut voir la cellule test dans laquelle a été installé le système d'isolation intérieur.

La cellule test est localisée au centre PERSEE, École des Mines de Paris à Sophia Antipolis dans le sud-est de la France (43° 39' N; 7° 12' E). Le climat associé est un climat méditerranéen avec un été chaud (Csa) d'après la classification de Köppen-Geiger [4][5]. Durant les mois chauds, la température moyenne est de 23 °C avec une amplitude journalière modérée de 7 °C et un rayonnement solaire global horizontal journalier de 7 $kWh \cdot m^{-2}$. Durant les mois froids, la température moyenne est de 9 °C avec une amplitude journalière de 8 °C et un rayonnement solaire global horizontal journalier de 1,6 $kWh \cdot m^{-2}$.

IV.1.2.b Instrumentation de la cellule test

Afin de mener à bien les mesures de performances du système d'isolation, la cellule test, et en particulier le mur test ont été instrumentés à l'aide de capteurs de température, de flux thermique et d'humidité. Le détail de chacun des capteurs et des grandeurs mesurées est donné ci-dessous (voir également Figure IV.1-3).

i Station météo

Une station météo installée au-dessus de la cellule permet de mesurer les conditions météorologiques extérieures. Elle est équipée d'un capteur de température d'air qui est protégé du rayonnement solaire et du vent (Température *Dry-Bulb*) ainsi que d'un pyranomètre Campbell Scientific mesurant le rayonnement solaire global horizontal sur la gamme de longueurs d'onde 300-1000 nm avec une précision de ±7 % et une étendue de mesure de 0-2000 $W \cdot m^{-2}$. La station météo est également équipée d'un anémomètre Pulsonic Aliza 147 pour mesurer la vitesse du vent avec une précision de 3 % et sa direction avec une précision de 5 degrés. Enfin la station météo dispose d'un capteur d'humidité relative Vaisala HUMICAP HMP110, protégé du rayonnement solaire et du vent permettant de mesurer l'humidité relative avec une précision de ±1,5 %.

ii Rayonnement solaire global vertical

Le mur sud dispose d'un pyranomètre Campbell Scientific fixé à côté de la paroi afin de mesurer le rayonnement solaire incident sur le mur test. Le pyranomètre possède les mêmes caractéristiques que celui de la station météo.

iii Capteurs de température et d'humidité

Les températures dans le mur et des surfaces intérieures et extérieures sont mesurées à l'aide de thermocouples de type K avec une précision de ±0,3 °C. Le taux d'humidité relative dans le mur est mesuré avec des capteurs d'humidité relative Vaisala HUMICAP ayant une précision de ±1,5 %. Pour la mesure des températures de surface extérieure, le rayonnement solaire est la principale source d'erreur de mesure. Les sondes de température sont donc intégrées au mieux dans la surface extérieure et sont recouvertes de pâte thermique blanche ou de scotch aluminium avec des propriétés d'absorption solaire similaires à celle du mur (enduit blanc).

iv Densité de flux thermique

La densité de flux thermique à travers la paroi est mesurée à l'aide de capteurs de flux thermique Hukseflux HFP01. Le capteur possède une surface de mesure de 8 cm^2 et une sensibilité nominale de 60 $\mu V/(W \cdot m^{-2})$.

v Ambiance intérieure

La température intérieure et l'humidité relative intérieure sont mesurées avec un capteur hygrothermique RHT-WM-DM ayant une précision de 1 °C pour la température et 3 % pour l'humidité relative. Un globe noir est utilisé pour la mesure du confort, celui-ci mesure la température radiative moyenne en l'absence de vent. En moyennant la température radiative moyenne avec la température résultante sèche intérieure, on obtient la température opérative de la pièce que l'on utilisera en tant qu'indice de confort thermique.

La température intérieure est maintenue constante avec une climatisation réversible de puissance 800 W. Le coefficient de performance (COP) vaut 3,68 pour le chauffage et 3,29 pour le refroidissement. Le système de climatisation réversible permet de maintenir la température intérieure constante à ± 2°C. La précision du maintien de la température de consigne n'est pas très bonne du fait du système de régulation de la climatisation réversible. De plus, en hiver, lorsque les températures sont basses, le chauffage peine à atteindre la température de consigne imposée. C'est pourquoi une deuxième méthode de chauffage a été utilisée pour l'hiver : une lampe de 500 W chauffe la pièce, et le refroidissement s'effectue par extraction d'air. Avec cette méthode, la température de consigne est maintenue à 0,1 °C près. Une ventilation est utilisée pour minimiser la stratification de la température de la cellule.

vi Système d'acquisition

Le système d'acquisition utilisé est Agilent 34980A pouvant accueillir 8 cartes d'entrées/sorties. La centrale d'acquisition comprend :

- 2 cartes de 40 voies de mesures, l'une utilisée pour les mesures en tension de capteurs tels que l'anémomètre et les pyranomètres, et l'autre pour les capteurs de conductivité thermique.
- 3 cartes de 70 voies de mesures utilisées pour les sondes de température
- 1 carte de 4 sorties permettant le pilotage du chauffage et de l'extraction d'air
- Une mesure de la consommation électrique du climatiseur effectuée par un système d'acquisition électrique PHOENIX CONTACT EMPRO en MODBUS

Le programme d'acquisition a été réalisé via le logiciel de programmation visuelle AGILENT VEE.

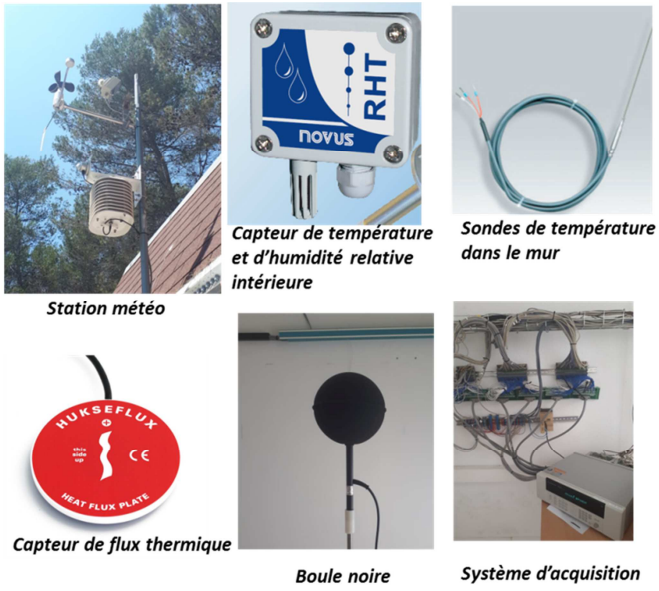


Figure IV.1-3 : Vue des différents instruments de mesure de la cellule test.

IV.1.2.c Position des capteurs

Les sondes de température sont disposées aux interfaces de chaque couche ainsi que sur la surface extérieure et sur la surface intérieure (voir Figure IV.1-4). Entre 3 et 9 sondes de température sont disposées sur chacune des surfaces. Cela permet de vérifier l'uniformité du champ de température à travers les murs et de détecter d'éventuelles anomalies de mesures (*e.g.* si le capteur est exposé au rayonnement solaire, ou s'il est placé proche d'un pont thermique). De plus, l'erreur de mesure faite à partir de plusieurs sondes est grandement réduite comparée à la mesure avec une unique sonde.

Les capteurs de flux thermique sont également disposés entre les différentes couches au centre de la surface : entre l'enduit isolant extérieur et le béton, entre le béton et le système d'isolation intérieur NGF, sur la surface intérieure du pare-vapeur et sur la surface intérieure du parement intérieur (plaque de plâtre).

Trois sondes d'humidité déjà présentes sur place sont situées entre l'enduit isolant extérieur et le béton. La Figure IV.1-4 résume les positions de toute l'instrumentation du mur test.

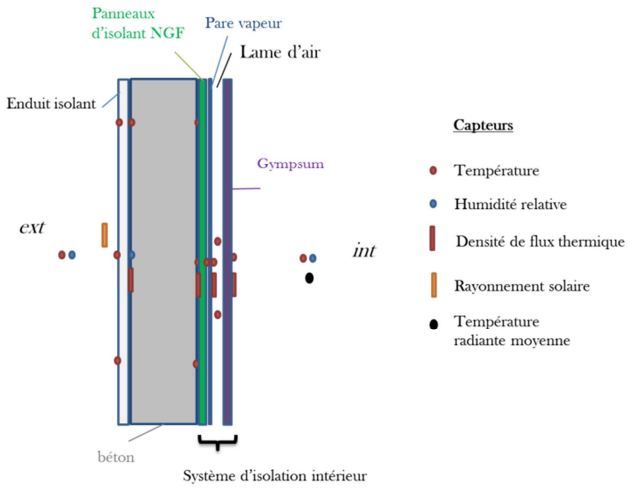


Figure IV.1-4: Vue en coupe du mur test et position des capteurs pour les essais *in situ*

IV.1.2.d Utilisation des multiples capteurs pour obtenir une valeur unique de température

Le choix d'une unique valeur de température de surface à partir de la mesure avec plusieurs sondes est effectué en utilisant la méthode d'analyse en composantes principales (*PCA* en anglais pour *principal component analysis*). Cette méthode permet de trouver la combinaison linéaire la plus raisonnable de toutes les mesures pour obtenir une unique valeur de température représentative de la surface. Ainsi, si un capteur est placé de manière inconsistante pour mesurer une température, l'analyse en composante principale considérera cette mesure comme non représentative.

Le principe de l'analyse en composantes principales consiste à considérer notre vecteur de mesures de température $T_t = (T_{1t}, T_{2t}, \dots, T_{nt})$ qui contient les valeurs de mesures des n capteurs à l'instant t. Il est bien connu en statistique multivariée que les composantes principales correspondent à une analyse des valeurs propres de la matrice de covariance du vecteur de mesure. En classant ces valeurs propres par ordre décroissant, la i ème composante principale Y_{it} se définit ainsi : $Y_{it} = p_i T_t$ avec p_i le i ème vecteur propre.

La première composante principale Y_{1t} définit la combinaison linéaire des mesures qui tient compte de l'essentiel des variations de la température. La première valeur propre associée quantifie à quel point la variation totale de température est déterminée par la première composante. Ainsi, la première composante principale est représentative de la température de toute la surface considérée et contient les informations des n sondes de températures. De ce fait, l'erreur de mesure est réduite d'un facteur $\sqrt{n}$ comparé à une mesure issue d'une sonde unique.

L'analyse en composantes principales a été effectuée sur chacune des surfaces du mur test et dans la lame d'air :

A. La surface extérieure (9 capteurs)
B. La surface entre l'enduit isolant extérieur et le béton (3 capteurs)
C. La surface entre le béton et l'isolant NGF (9 capteurs)
D. La surface entre l'isolant NGF et le pare-vapeur (3 capteurs)
E. La surface intérieure du pare-vapeur (3 capteurs)
F. La lame d'air (2 capteurs)
G. La surface intérieure (3 capteurs)

Pour les cas A, B, D, F, G, l'analyse en composantes principales montre que la première valeur propre décrit plus de 98 % de la variation de température. La première composante principale pondère chaque sonde de manière environ égale, et par conséquent cette composante sera la meilleure représentation de la température mesurée. À titre d'exemple, le premier vecteur propre dans le cas B est : $p_1 = (0.60;\ 0.55;\ 0.59)$. En normalisant ce vecteur propre, on exprime alors la température de surface entre l'enduit isolant extérieur et le béton par $T_t = 0{,}36T_{51t} + 0{,}31T_{52t} + 0{,}32T_{53t}$. Les variations de température mesurées par chacune des trois sondes sont montrées en Figure IV.1-5.

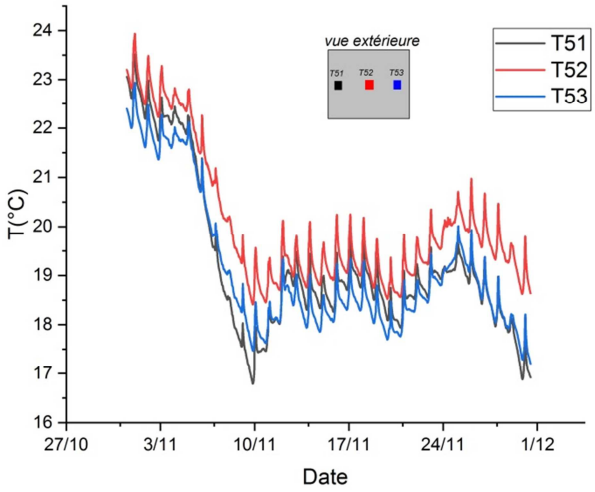


Figure IV.1-5: Température entre l'enduit isolant extérieur et le béton mesurée par trois sondes de température T51,T52 et T53.

Pour le cas E dans lequel est mesurée la température de surface intérieure du pare-vapeur avec trois sondes, la première composante principale décrit 84 % de la variation de température. Le vecteur propre normalisé associé est : $p_1 = (0.47; 0.49; 0.04)$. Dans ce cas, la troisième sonde T109 n'est que très peu représentative de la température du mur (pondération de 4 %). En effet, ce capteur est localisé tout à droite du pare-vapeur en regardant le mur test de l'intérieur (côté Ouest) où l'on soupçonne la présence d'un pont thermique. Ce dernier est décrit par la deuxième composante principale et représente 16 % de la variation de température du mur. La Figure IV.1-6 illustre la présence du pont thermique vue depuis l'extérieur, et les variations de température de la surface intérieure du pare-vapeur. La présence du pont thermique est due au

fait que l'enduit isolant extérieur ne recouvre pas la totalité du béton, notamment côté Ouest où le béton à nu, provoque une concentration de flux thermique.

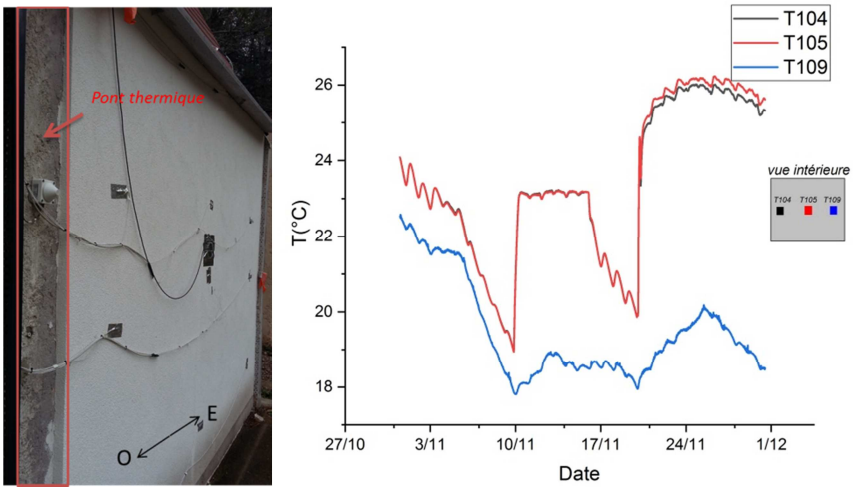


Figure IV.1-6: (gauche) Vue extérieure sur la zone de pont thermique, (droite) Température sur la surface intérieure du pare-vapeur mesurée par trois sondes de température T104,T105 et T109.

Enfin, pour le cas C, l'analyse en composantes principales a permis d'identifier une sonde défaillante (T117), exclue par la suite de l'analyse. La première composante principale décrit 81 % de la variation de température et la seconde composante principale décrit le reste de la variation. Les vecteurs propres associés et le vecteur de mesure sont:

$$p_1 = (0.25;\ 0.35; 0.40; 0.30; 0.33; 0.42; 0.31; 0.43)$$
$$p_2 = (0.82; 0.02\ ; -0.59; 0.02; 0.04; -0.01\ ; 0.02; -0.01)$$
$$T_t = (T_{110t}\ ; T_{111t}\ ; T_{112t};\ T_{113t}\ ; T_{114t}\ ;\ T_{115t}\ ;\ T_{116t}\ ; T_{118t})$$

On voit que la première composante principale décrite par p_1 est équitablement pondérée par chaque sonde, et elle sera donc la meilleure représentation de la température de surface intérieure du béton. La seconde composante principale correspond approximativement à la différence de température entre T110 et T112 (voir sur Figure IV.1-7). T110 est la sonde dans le coin supérieur gauche du mur alors que T112 est dans le coin supérieur droit à proximité du pont thermique où la température est plus faible. De plus, on remarque que cette composante suit les mêmes tendances que la consigne en température intérieure et on en conclut donc que lorsque le chauffage est actif, il y a des différences entre les multiples mesures qui ne sont pas présentes en l'absence de chauffage. C'est bien ce que l'on observe sur la sonde T110, lorsque le chauffage est actif, la lampe chauffante posée au sol crée un tirage thermique qui va forcer l'air chaud à se déplacer vers le haut de la cellule et qui va donc réchauffer la partie haute du mur. Sur la partie droite du mur, le pont thermique fait que la température baisse localement, et il en résulte donc dans les mesures un point chaud dans le coin supérieur gauche. En l'absence de chauffage, on retrouve bien une distribution de température plus uniforme. La Figure IV.1-7 montre l'évolution de température de la surface intérieure du béton mesurée avec les 8 sondes ainsi que leurs positions. Avant le 10/11, aucune consigne de température intérieure n'était

imposée et on observe bien l'uniformité de la distribution de température. Après le 10/11, la température de consigne intérieure est de 23 °C, puis 26 °C à partir du 20/11. La température de la sonde T110 suit cette tendance et se démarque des autres sondes. On confirme qu'il y a accumulation de la chaleur dans le coin supérieur-gauche de la paroi vue depuis l'intérieur.

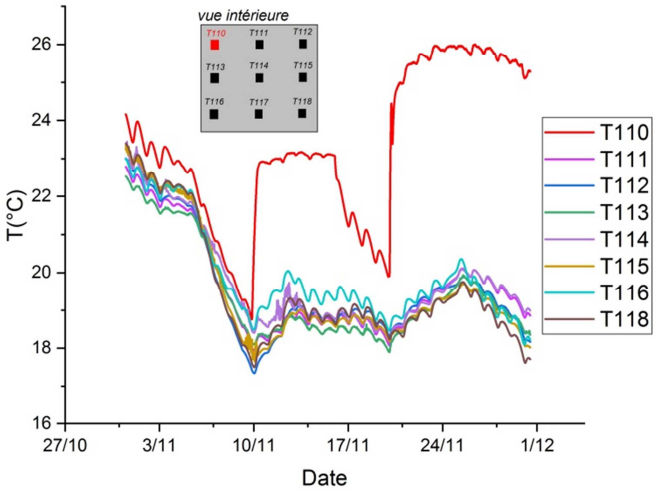


Figure IV.1-7: Température sur la surface intérieure du béton mesurée par neuf sondes de température

IV.2 Méthodologie de la campagne de mesure

IV.2.1. Critère de performances intrinsèques

La campagne de mesure de la cellule expérimentale a pour but de caractériser le système d'isolation NGF et d'en étudier l'influence sur le comportement du bâtiment. La performance même du système d'isolation ou du mur test entier est évaluée par des propriétés intrinsèques, théoriquement indépendantes des conditions limites (conditions climatiques) si l'on reste dans des conditions de température et d'humidité raisonnables.

IV.2.1.a Coefficient de transmission thermique *U-value*

Le principal critère de performance de la paroi est le coefficient de transmission thermique U ($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$) que l'on considère comme constant. Il est défini d'après la norme ISO9869 comme l'inverse de la résistance thermique totale de la paroi R_T ($m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$).

$$R_T = \frac{1}{h_i} + \sum \frac{d_i}{\lambda_i} + \frac{1}{h_e} \quad \text{(IV.1)}$$

avec h_i et h_e les coefficients de transfert de chaleur des surfaces intérieures et extérieures, d_i l'épaisseur de la couche *i*, et λ_i la conductivité thermique effective de la couche *i*.

Dans le cas général les coefficients h_i et h_e ne sont pas constants et pas linéaires. Cependant, le mur test étant bien isolé, les variations de résistance associées à la convection et aux rayonnements grandes longueurs d'onde sont faibles devant la résistance propre du mur, et donc l'hypothèse du U constant reste valable dans notre cas. D'après les fiches techniques de chacune des couches de la paroi et des mesures de caractérisations en laboratoire, et en prenant $h_i = 7{,}7\ W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$ et $h_e = 25\ W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$ (d'après ISO 6946), le U théorique de la paroi après isolation est $0{,}30\ W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$. Le calcul du U à partir de la géométrie du mur et des propriétés thermiques des différentes couches nous donne une idée de la valeur du U que l'on devra obtenir à partir des séries de données expérimentales. Ce résultat théorique sera utilisé comme validation externe pour rejeter certains résultats de U trop éloignés de la référence théorique.

IV.2.1.b Coefficient de transmission solaire *g-value*

Un deuxième critère utilisé est le coefficient de transmission solaire de la paroi opaque g qui caractérise les gains solaires sur la surface intérieure causés par les rayonnements incidents sur la surface extérieure, en régime permanent.
Il est défini théoriquement par l'expression suivante (ASHRAE,1999) :

$$g = \frac{\alpha U}{h_e} \quad \text{(IV.2)}$$

avec α l'absorptance solaire de la surface extérieure, U le coefficient de transmission thermique de la paroi et h_e le coefficient de transfert de chaleur de la surface extérieure. L'absorptance solaire de notre surface extérieure dépend du matériau, de la rugosité de surface et de la couleur du revêtement. Il est a priori inconnu, mais compte tenu de la finition blanche de la couche extérieure de l'enduit, celui-ci devrait être compris entre 0,15 et 0,5. Ainsi le g associé théorique devrait être inférieur à 0,03.

IV.2.1.c Capacité thermique effective C

Un troisième critère utilisé est la capacité thermique effective du système thermique « paroi ». Cette grandeur a été introduite par Antonopoulos et Koronaki [7] et ne doit pas être confondue avec la capacité thermique apparente obtenue d'après les caractéristiques des matériaux de construction. La capacité apparente n'est pas vraiment utile pour les applications concernant la dynamique thermique des bâtiments excepté pour des estimations grossières ou des comparaisons.

La capacité thermique effective (ou réelle) doit être considérée comme un paramètre auxiliaire qui régule l'énergie accumulée dans le système thermique et qui dépend des caractéristiques du système et des conditions limites. Elle est la part de la capacité thermique apparente qui contribue réellement au stockage de la chaleur et diffère largement de cette dernière.

IV.2.1.d Facteur d'amortissement f et déphasage ϕ

Les derniers critères intrinsèques de la paroi considérés sont le déphasage du mur et son facteur d'amortissement. Le déphasage du mur correspond au temps que met l'onde thermique pour passer à travers le mur et le facteur d'amortissement est la réduction d'amplitude de cette onde. Ces deux critères sont des indicateurs de confort associés à chaque paroi. Avec un facteur d'amortissement de paroi suffisamment faible, la propagation de fortes fluctuations de température extérieure est réduite, et l'on peut obtenir des températures intérieures presque constantes, synonymes d'un bon niveau de confort. Le déphasage du mur est étroitement lié à sa masse thermique. Comme le mur test est orienté plein Sud, il est intéressant d'obtenir un déphasage d'au moins 8 heures, afin de retarder les gains solaires importants du midi en les restituant le soir, quand la température extérieure commence à baisser. Ainsi, on évite la surchauffe en pleine journée et on tire profit de cette chaleur le soir. Les calculs de facteur d'amortissement et de déphasage sont effectués avec la température de surface intérieure et la température sol-air en conditions *Free-Floating*. On rappelle leurs expressions mathématiques :

$$f = \frac{\Delta T_{sa}}{\Delta T_{si}} \tag{IV.3}$$

$$\phi = \mathrm{t}_{\mathrm{T_{si,Max}}} - \mathrm{t}_{\mathrm{T_{sa,Max}}} \tag{IV.4}$$

où ΔT_{sa} est l'amplitude de la température sol-air prenant en compte l'effet combiné du rayonnement solaire et du gradient de température, ΔT_{si} est l'amplitude de la température de

surface intérieure. $t_{T_{si,Max}}$ est le temps où la température de surface intérieure est maximale et $t_{T_{sa,Max}}$ est le temps où la température sol-air est maximale.

Les quatre critères présentés ci-dessus sont propres à la paroi et ne dépendent a priori pas des conditions climatiques mais seulement des propriétés physiques de la paroi. Il est donc possible de les comparer avant et après la réhabilitation du mur par le système d'isolation pour en déduire directement les performances du dit système.

IV.2.2. Critères de performance sur la consommation énergétique et le confort

Les critères de performance sur la consommation énergétique et le confort dépendent fortement des conditions climatiques extérieures. Il s'agit par exemple des déperditions thermiques à travers le mur test ou la consommation en chauffage et en refroidissement de la cellule. Comme nous ne disposons pas d'une cellule de référence pour comparer en temps réel les performances thermiques avec celles de la cellule test, nous effectuerons la comparaison avant et après réhabilitation de la cellule sur des climats les plus similaires possible. Bien entendu, cette méthode est en toute rigueur inexacte étant donné que le climat ne peut être absolument identique sur deux périodes différentes, mais elle reste la seule capable de permettre d'évaluer ces critères de manière raisonnable.

IV.2.2.a Flux thermique sur la surface intérieure Q

La densité de flux thermique mesurée sur la surface intérieure du mur test correspond soit aux déperditions thermiques dans le cas de l'hiver, soit aux gains solaires dans le cas de l'été. En prenant en compte uniquement le gradient de température et les gains solaires, le bilan de conservation de l'énergie en régime permanent donne :

$$Q = U\Delta T - gG_v \tag{IV.5}$$

avec U et g le coefficient de transmission thermique de la paroi et le coefficient de transmission solaire, respectivement, ΔT le gradient de température et G_v le rayonnement solaire global vertical.

IV.2.2.b Besoin en énergie finale : chauffage et refroidissement

Le besoin en énergie finale est l'énergie consommée par le système de chauffage/refroidissement pour maintenir la température de consigne en prenant en compte le rendement du système. Il est directement déterminé par mesures électriques de la climatisation réversible ou bien par calcul dans le cas de la lampe chauffante. Malheureusement, la cellule test est très perméable à l'air et l'énergie dépensée par le système de chauffage pour maintenir la température de la cellule constante sert presque exclusivement à contrer les pertes par infiltration d'air. Le taux de renouvellement d'air sous 50 Pascals de la cellule vaut 13,2 $\text{vol} \cdot \text{h}^{-1}$ ce qui représente plus de

80 % de l'énergie consommée par chauffage ou refroidissement. À titre de comparaison, la RT 2012 préconise un taux d'infiltration inférieure à 0,6 vol · h^{-1}. La mesure du taux de renouvellement a été faite en décembre 2017 par un dispositif de porte soufflante « *Blower door* » (Figure IV.2-1).

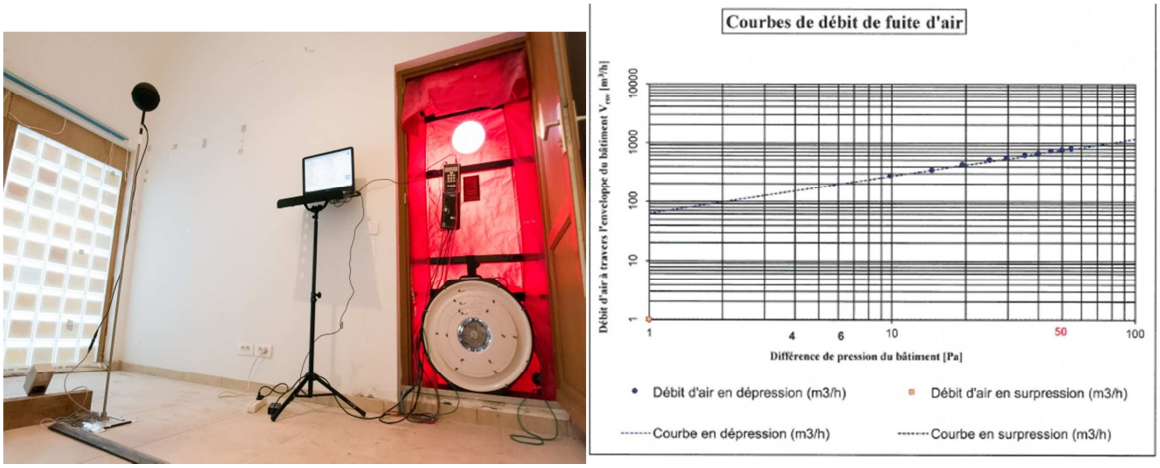


Figure IV.2-1: (gauche) Essai en porte soufflante de la cellule test en décembre 2017, (droite) Résultats d'essais d'infiltration d'air.

La courbe de débit de fuite d'air permet de calculer le taux de renouvellement d'air de la cellule à 50 Pascals n_{50} = 13,2 vol · h^{-1} et la perméabilité à l'air sous 4 Pascals $Q_{4\text{-Pa-surf}}$ = 2,1 $m^3 \cdot h^{-1} \cdot m^{-2}$. Le détail des mesures et des calculs pourra être trouvé dans le rapport en Annexe 4. L'analyse de fuite d'air montre qu'il y a une infiltration d'air très importante au niveau des doublages intérieurs, des prises électriques, interrupteurs et autres unités électriques terminales encastrés sur les parois extérieures, de la climatisation réversible et au niveau des percements non rebouchés (gaines et fils électriques).

Connaissant le taux d'infiltration de la cellule, un rapide calcul nous donne comme valeur des déperditions thermiques par ventilation Q_v ~ 160 W · K^{-1}, alors que les déperditions thermiques à travers la paroi de l'ordre de Q_e ~ 5 W · K^{-1}. Du fait de cette forte infiltration, le critère de consommation en énergie finale de la cellule devient caduc, car il ne permet pas de visualiser l'influence du système d'isolation sur les performances énergétiques globales de la cellule.

IV.2.2.c Confort thermique

Le critère de confort thermique est basé sur le concept de l'indice de confort thermique (TCI). Ce dernier dépend explicitement du temps de mesure et on préfère utiliser pour la cellule un critère indépendant du temps de mesure. Cela permet de comparer le confort sur des temps de mesures différents, mais avec un climat proche. Ainsi, le critère choisi correspond à l'écart moyen entre la température opérative de la cellule et la zone de confort :

$$\Delta\overline{Tc} = \frac{\sum |T_{op} - T_{conf}| . dt}{\sum dt} \qquad \text{(IV.6)}$$

T_{op} est la température opérative de la cellule et T_{conf} la zone de confort de la température opérative calculée selon le modèle de confort adaptatif en catégorie II. Cela correspond environ à une plage de température de confort de 23-26 °C pour la saison estivale et 20-25°C pour la saison hivernale.

IV.2.3. Acquisition et traitements des données

Les données ont été acquises sans interruption entre le 1er décembre 2016 et le 30 juin 2018 avec un pas de temps de 5 minutes. Les données avant le 30 juillet 2017 correspondent à la cellule test sans le système d'isolation que l'on appellera par la suite le cas *Baseline*. À partir du 1er août 2017, les données correspondent au mur test réhabilité par le système d'isolation intérieur, que l'on appellera par la suite le cas *Retrofit.* Les données du cas *Baseline* contiennent 7 mois de mesures découpés en 16 séries *(1b-16b)* d'environ 2 semaines. Les trois premières séries (1b-3b) sont des mesures d'hiver (décembre-janvier) réalisées en conditions *Free-Floating,* les sept suivantes (4b-10b) sont des mesures d'hiver avec une température de consigne imposée à 23 °C (janvier-avril). Les six dernières (11b-16b) sont issues de mesures en *Free–Floating* d'été (Mai-Juillet).

Les données du cas *Retrofit* contiennent 11 mois de mesures découpées en 21 séries d'environ deux semaines. Les cinq premières séries (1r-5r) sont des mesures d'été avec une température intérieure de consigne de 23 °C ou 26 °C (août-octobre). Les séries 6r et 9r sont des mesures hivernales en *Free-Floating* (octobre et décembre). Les séries 7r et 8r sont des mesures alternées entre *Free-Floating* et température de consigne imposée à 23 °C et 28 °C (novembre). Les séries 10r-15r et 16r sont des mesures en température intérieure imposée à 23 °C (janvier-avril) et 28 °C (avril), respectivement. Enfin, les dernières séries (17r-23r) correspondent à des mesures en *Free-Floating* pendant l'été 2018 (mai-juillet).

Pour le calcul des paramètres physiques de la paroi tels que le *U-value* et le *g-value*, l'identification des paramètres se fait de façon préférentielle en période hivernale, lorsque le gradient de température est supérieur à 10 °C, afin de maximiser le flux thermique dans la paroi et de minimiser les incertitudes [8]. De plus, les calculs sont effectués sur chaque série, puis sur deux *séries* successives, puis sur la totalité des séries afin de croiser les résultats.

Les mesures en *Free-Floating* permettent quant à elles de déterminer le facteur d'amortissement et le déphasage de la paroi. Leurs calculs sont effectués sur des périodes ou les jours successifs sont similaires en termes de température sol-air. Les mesures en *Free-Floating* sont pour la plupart effectuées en été afin d'étudier également le confort d'été. La mesure des propriétés thermiques de la paroi en été est peu adaptée car le système de climatisation peine à créer un gradient de température suffisamment grand entre l'intérieur et l'extérieur.

Le Tableau IV.2-1 donne une vue d'ensemble des grandeurs caractéristiques déduites des données acquises pendant la campagne de mesure. On y trouve le gradient de température moyen entre les températures intérieure et extérieure, le rayonnement solaire global vertical moyen sur la paroi et la densité de flux thermique traversant la surface intérieure.

Série	dates	T_{int} (°C)	ΔT (°C)	G_v (W · m^{-2})	Φ_{int} (W · m^{-2})
1b	01/12/2016 - 15/12/2016	Libre	5,2	57	2,8
2b	16/12/2016 - 31/12/2016	Libre	4,8	43	2,1
3b	01/01/2017 – 13/01/2017	Libre	6	54	2,1
4b	14/01/2017 – 31/01/2017	23	16,1	55	12,3
5b	01/02/2017 – 14/02/2017	23	13	41	8,2
6b	15/02/2017 – 28/02/2017	23	11,8	102	6,2
7b	01/03/2017 – 15/03/2017	23	10,4	131	5,1
8b	16/03/2017 – 31/03/2017	23	9,6	92	4,4
9b	01/04/2017 – 15/04/2017	23	7,4	105	2,4
10b	16/04/2017 – 30/04/2017	23	9,1	104	3,5
11b	02/05/2017 – 15/05/2017	Libre	5,1	80	0,8
12b	16/05/2017 – 31/05/2017	Libre	3,1	96	1,4
13b	01/06/2017 – 15/06/2017	Libre	3,8	86	0,6
14b	16/06/2017 – 30/06/2017	Libre	3,3	78	-0,4
15b	01/07/2017 – 09/07/2017	Libre	2,8	90	1,4
16b	09/07/2017 – 19/07/2017	Libre	3,4	93	0,4
1r	05/08/2017 – 18/08/2017	23	-2,9	111	-2,9
2r	19/08/2017 – 08/09/2017	N/A	N/A	N/A	N/A
3r	08/09/2017 – 18/09/2017	23	4,0	109	-0,6
4r	18/09/2017 – 29/09/2017	23	5,9	95	0,4
5r	02/10/2017 - 17/10/2017	26	7,8	122	1,5
6r	18/10/2017 – 30/10/2017	Libre	7,6	109	0,8
7r	01/11/2017 – 20/11/2017	Libre / 23	9,3	64	2,6
8r	20/11/2017 – 05/12/2017	28	20,1	52	7,2
9r	06/12/2017 - 23/12/2017	Libre	7,7	36	1,4
10r	24/12/2017 – 14/01/2018	23	12,2	32	5
11r	15/01/2018 – 31/01/2018	23	12,5	71	5
12r	01/02/2018 – 14/02/2018	23	15,8	74	5,4
13r	15/02/2018 – 28/02/2018	23	16,4	31	5,8
14r	01/03/2018 – 15/03/2018	23	13,2	82	5,8
15r	16/03/2018 – 31/03/2018	23	13,5	94	5,4
16r	01/04/2018 – 17/04/2018	27	13,3	70	4,6
17r	18/04/2018 – 01/05/2018	N/A	N/A	N/A	N/A
18r	02/05/2018 – 16/05/2018	Libre	6,1	68	-0,2
19r	17/05/2018 – 31/05/2018	Libre	3,1	77	0,3
20r	02/06/2018 – 16/06/2018	Libre	3,6	69	-0,1
21r	17/06/2018 – 30/06/2018	Libre	2,6	84	-0,2
22r	01/07/2018 – 15/07/2018	Libre	3	89	-0,3
23r	16/07/2018 – 31/07/2018	Libre	3.6	92	-0,4

Tableau IV.2-1 : Résumé des données acquises pendant la campagne de mesures. Hiver en bleu, printemps en vert, été en rouge et automne en orange.

Une vue graphique des données issues de la campagne de mesures est présentée en Figure IV.2-2. Les variables principales sont tracées (température extérieure et intérieure, rayonnement solaire, densité de flux thermique de la surface intérieure) pour les mois de février 2017, février 2018 et juin 2018. Cette vue graphique permet dans un premier temps d'évaluer qualitativement les données et de détecter les anomalies d'acquisition. Sur la Figure IV.2-2, les données montrent des tendances normales pour les séries choisies. Le mois de février 2017 correspond aux séries 5b et 6b pendant la période de chauffe, avant l'installation du système isolant. Le mois de février 2018 correspond aux séries 12r et 13r pendant la période de chauffe, avec le système isolant. Pour ces 4 cas, la température intérieure est maintenue à 23°C et les conditions climatiques extérieures sont relativement proches. On observe qualitativement que le flux thermique de la paroi intérieure est significativement réduit. La mesure de ce flux thermique est très bruitée en raison du système de chauffe qui ajuste systématiquement la température intérieure afin de la maintenir à 23 °C. Le mois de juin 2018 correspond aux séries 20r et 21r pendant des conditions climatiques chaudes. Les mesures y sont effectuées en *Free-Floating* et on voit bien sur le graphique en bas à gauche le déphasage et l'amortissement des fluctuations entre les températures extérieure et intérieure. Le flux thermique mesuré est cette fois-ci non bruité en l'absence de contrôle de la température intérieure.

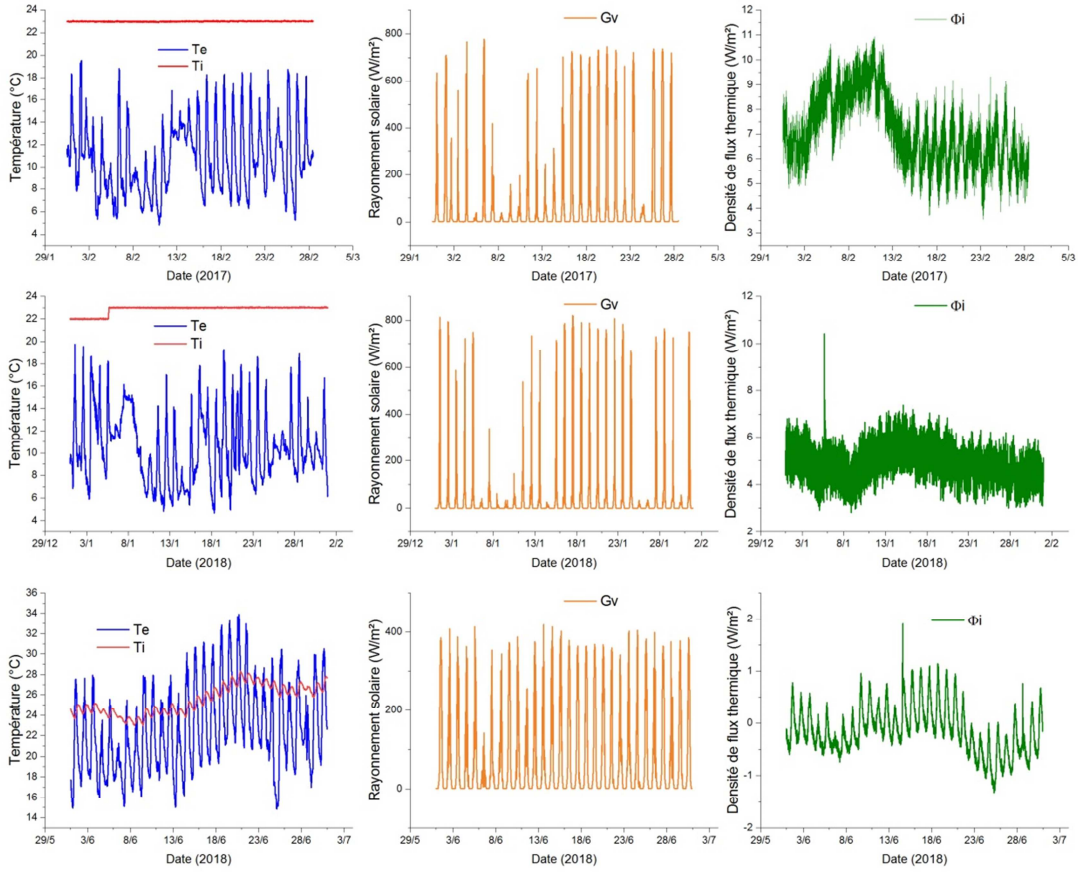


Figure IV.2-2:Vue graphique des principales données (Température intérieure et extérieure, rayonnement solaire et densité de flux thermique intérieur) pour les mois de février 2017, février 2018 et juin 2018

Filtrage des données

Comme on a pu le voir sur la Figure IV.2-2 avec la mesure du flux thermique, certaines variables mesurées sont fortement bruitées. C'est le cas notamment des variables de flux et de température intérieure lorsque le thermostat ajuste continuellement la température intérieure pour atteindre la consigne. Cet ajustement de température conduit à des variations hautes fréquences des variables, qui ne correspondent pas à un phénomène physique du bâtiment ou de ses composants et entravent l'identification des paramètres physiques du mur.

L'application d'un filtre passe-bas sur les données brutes d'entrée permet d'atténuer voire de supprimer ces variations hautes fréquences parasites. L'utilisation d'un filtre passe-bas par moyenne mobile sur un intervalle de 2 heures permet de filtrer efficacement les données tout en conservant la dynamique thermique du mur. La Figure IV.2-3 illustre le filtrage des données par la méthode de la moyenne mobile.

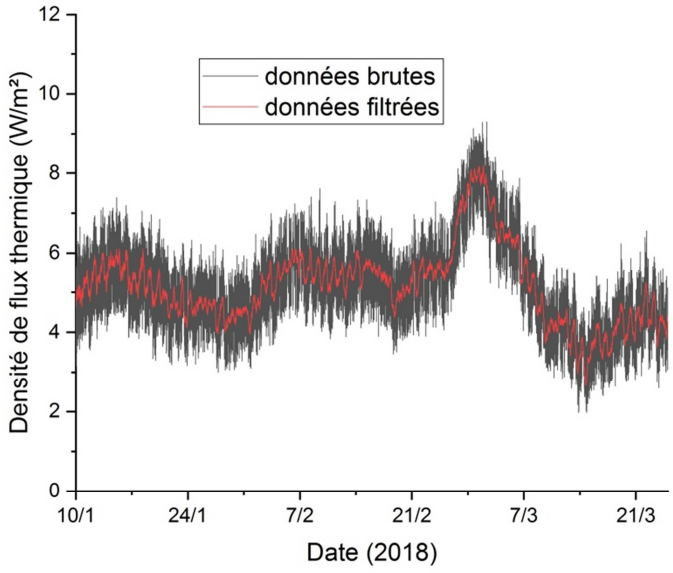


Figure IV.2-3: Filtrage des données avec un filtre passe-bas par moyenne mobile d'intervalle 2h.

IV.3 Méthodes pour l'estimation des paramètres caractéristiques d'une cellule test

IV.3.1. Introduction

Il existe de nombreuses méthodes et modèles pour l'analyse des transferts thermiques dans une cellule test. Le choix de la méthode dépend de ce que l'on souhaite calculer et des données de mesures disponibles. Identifier les caractéristiques physiques d'une cellule test à partir des données expérimentales relève de la notion de problème inverse. Nous pourrions déterminer ces caractéristiques à partir des données de construction de la cellule et de chacun des matériaux mais cela est sujet à de nombreuses possibilités d'erreur et de mauvaises interprétations. Les propriétés physiques des matériaux tels qu'installés dans la cellule sont souvent différentes de celles reportées dans la littérature et la construction/rénovation de la cellule n'a pas forcement suivi les spécifications initiales. On peut également ajouter les incertitudes liées aux vieillissements des matériaux, à l'humidité dans les parois et les ponts thermiques qui peuvent introduire des différences notables entre les performances réelles des murs et celles spécifiées lors de la conception.

La résolution du problème inverse est souvent associée à un problème d'estimation de paramètre. Dans le cas de la cellule test, les données expérimentales sont fonction du temps, on utilisera alors les concepts d'analyse de série temporelle [9], introduits en Annexe 5 (en anglais). Pour un problème inverse, le nombre de paramètres à estimer doit être petit car les informations contenues dans les données expérimentales sont limitées et sont sujettes à erreurs.

Rabl [10] décrit les méthodes couramment utilisées en problème inverse pour l'estimation des paramètres caractéristiques d'une cellule test. On distingue les modèles en régime permanent et ceux en régime dynamique Le Tableau IV.3-1 fournit une description des grands modèles de la littérature.

Méthode	**Auteurs**
Méthodes en régime permanent	
PRISM	Fels [11]
Average method	ISO 9869 [12]
Méthodes dynamiques	
Circuit RC	Sonderegger [13]
Analyse de Fourier	Shurcliff [14]
Modèle ARMA	Subbarao [15]
Analyse modale	Bacot et al. [16]
Réseau de neurones	Kreider [17]

Tableau IV.3-1: Revue des différentes méthodes d'estimation de paramètres pour une cellule test

Les modèles en régime permanent permettent de déterminer uniquement la résistance thermique d'une paroi et son coefficient de transmission solaire. La méthode « *average method* » de la norme ISO 9869 reste la plus utilisée de nos jours en raison de sa grande simplicité. Les méthodes dynamiques utilisées pour la résolution du problème inverse en thermique sont les suivantes : Circuit RC [13], Analyse de Fourier [14], modèle ARMA [15] (AutoRegressive Moving Average), analyse modale [16] et réseau de neurones [17].

Ces modèles peuvent être classifiés en modèles externes (*black box*) et modèles internes (*grey box*). Les modèles internes dont font partie l'analyse de Fourier, ARMA et les réseaux de neurones décrivent uniquement la relation entre les entrées du système et les sorties mais pas les détails physiques des processus en jeu. Les paramètres identifiés contiennent toutes les informations du système et permettent la prédiction de son comportement futur. Cependant, ces paramètres n'ont aucune interprétation physique directe. Il est possible cependant d'en extraire les constantes de temps du système et dans une moindre mesure le coefficient de transmission thermique mais les valeurs calculées peuvent changer drastiquement selon l'ordre de la régression.

La force des modèles internes (circuit RC, analyse modale) est leur capacité à coupler les données avec la physique du modèle et de fournir un aperçu de la dynamique thermique des composants. Ces modèles décrivent les variables d'état du système dynamique de façon continue dans le temps avec une série d'équations discrètes qui décrit le lien entre les mesures expérimentales et les états du système. Les paramètres ainsi estimés ont une signification physique directe. On appelle également ce type de modèle « représentation d'état » ou « *state-space model* ».

La plupart du temps les modèles « *state-space* » pour le bâtiment utilisent une description avec un circuit RC (résistances-capacités). Le bâtiment est approximé par un simple circuit avec quelques résistances et capacités et on y effectue un calcul de conservation de l'énergie sur chacun des nœuds du système. Le circuit le plus simple comprend deux résistances et une capacité (Figure IV.3-1a) et s'appelle circuit 2R1C. Les températures Te et Ti sont les variables d'entrées issues des mesures expérimentales, Qi est la variable de sortie, elle est à la fois mesurée et calculée, R_1,R_2,C_W sont les paramètres physiques du mur à identifier, respectivement la résistance thermique entre le mur et l'intérieur, la résistance thermique entre le mur et l'extérieur, et la capacité du mur. T_W est appelé état du système, il est dit caché car il n'est pas mesuré. Le modèle 2R1C présenté est un modèle du 1er ordre car il possède une seule variable d'état (T_W).

En fonction des données mesurées expérimentalement, on peut complexifier les circuits RC pour obtenir plus d'informations physiques du système. La Figure IV.3-1b donne un exemple d'un circuit 3R2C du second ordre pour modéliser le transfert thermique d'un mur. Si l'on connaît le rayonnement global vertical Gv sur la paroi, on peut ajouter un terme αGv correspondant à la fraction absorbée du rayonnement solaire par le mur, avec α l'absorptance solaire de la surface extérieure qui devient un paramètre à identifier. Dans le découpage du circuit RC de la Figure

IV.3-1b, R_1 est la résistance entre l'air et la surface extérieure et correspond à $1/he$ avec he le coefficient d'échange superficiel extérieur. C_1 et C_2 sont les capacités thermiques effectives des parties du mur.

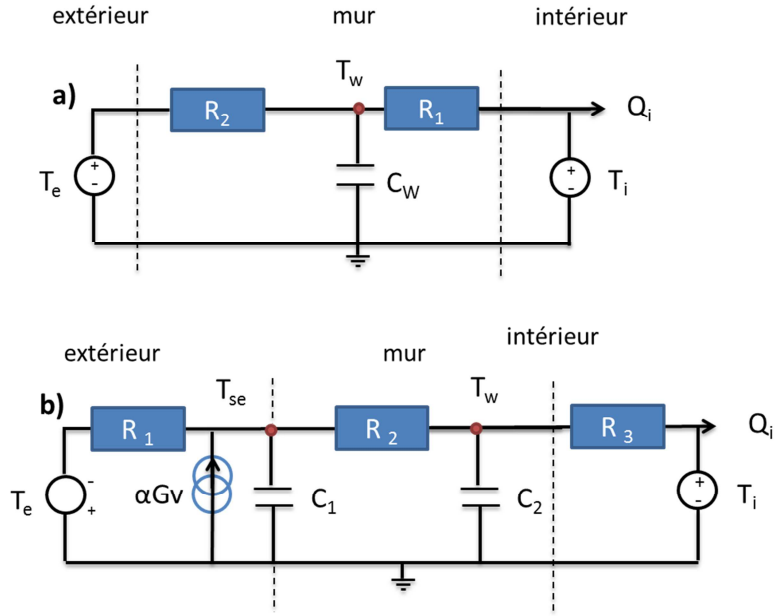
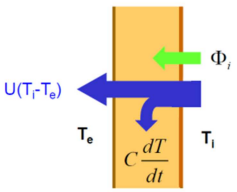


Figure IV.3-1 : a) Circuit 2R1C du 1er ordre, b) Circuit 3R2C du 2ème ordre

La construction du circuit RC dépend des données expérimentales que l'on mesure et des caractéristiques physiques que l'on souhaite estimer du système thermique. Le choix du modèle doit être confirmé par des procédures de validation *a posteriori* qui seront décrites dans la suite du chapitre. Dans leur article, Bacher et Madsen [18] décrivent une procédure pour identifier les modèles adéquats pour la description du transfert thermique à travers une paroi.
Les circuits RC possèdent l'approche la plus simple pour décrire le transfert thermique dans un bâtiment et peuvent même être utilisés pour modéliser des phénomènes plus complexes: vitrage, convection libre, rayonnements, panneaux PV, etc.

IV.3.2. Méthode du régime permanent

Les modèles construits sont basés sur la conservation de l'énergie de la paroi en régime permanent. En considérant uniquement le transfert conductif dans la paroi, l'équation de conservation de flux s'écrit :



$$\Phi_i = C\frac{dT}{dt} + U(T_i - T_e) \qquad \text{(IV.7)}$$

En intégrant la relation précédente sur un temps Δt suffisamment long, on obtient :

$$\int_0^{\Delta t} C\frac{dT}{dt}dt \ll \int_0^{\Delta t} \Phi_i dt - \int_0^{\Delta t} U(T_i - T_e)dt \qquad \text{(IV.8)}$$

et on obtient donc le transfert de chaleur en régime permanent de la paroi :

$$\overline{\Phi_i} \cong U(\overline{T_i} - \overline{T_e}) \qquad \text{(IV.9)}$$

IV.3.2.a « Average method »

Cette méthode est décrite en détail dans la norme ISO 9869 [12]. Le coefficient de transmission thermique est obtenu en divisant la densité de flux thermique moyenne de la surface intérieure par la différence de température moyenne entre l'intérieur et l'extérieur :

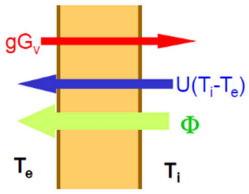
$$U = \frac{\sum_{j=1}^{n} \Phi_{ij}}{\sum_{j=1}^{n} (T_{ij} - T_{ej})} \qquad \text{(IV.10)}$$

L'équation(IV.10) est issue de la régression linéaire de l'équation (IV.9).

Lorsque le calcul du U est effectué à chaque pas de temps de mesure, on observe une convergence du U vers une valeur asymptotique. La valeur finale de U est obtenue lorsqu'elle ne varie pas de plus de 5 % par rapport à sa valeur 24 h avant. Le temps d'acquisition dépend essentiellement de la masse thermique du mur. Dans le cas du mur test, la période d'acquisition est d'au minimum 1 mois pour observer C s'annuler. L'incertitude totale liée à cette méthode pour le calcul du U est estimée entre 14 % et 28 %.

IV.3.2.b Prise en compte du rayonnement

Le modèle de *l'average method* ne prend pas en compte le rayonnement solaire de la paroi extérieure. Celui-ci peut être négligeable en cas de forte isolation de la paroi et/ou de forte masse thermique du mur mais il peut également influer de manière conséquente. En incluant le rayonnement solaire dans le bilan des flux de la surface intérieure, on obtient l'équation suivante :



$$\overline{\Phi_i} \cong U\left(\overline{T_i} - \overline{T_e}\right) - g\overline{G_v} \qquad \text{(IV.11)}$$

En effectuant une simple régression linéaire, on peut alors déterminer les paramètres inconnus U et g (coefficient de transmission solaire) à partir des mesures de températures intérieure, extérieure, et du rayonnement solaire global vertical.

IV.3.3. Méthodes dynamiques

Les modèles dynamiques utilisés sont basés sur les concepts de représentation d'état ou « *state space model* » évoqué en introduction. Tout d'abord, il est important de noter que les couches du mur sont supposées homogènes et que les flux thermiques mesurés sont unidimensionnels, perpendiculaires aux surfaces. Ensuite, comme la variation des températures et des flux thermiques dans le mur est gouvernée par le cycle diurne et que les caractéristiques physiques du mur sont à peu près connues, les longueurs d'onde des ondes thermiques associées (~1 m) traversant le mur sont bien plus grandes que la longueur du mur (~0,1 m). Cela permet d'utiliser l'analogie thermique-électrique et de discrétiser le mur en un circuit RC.
Le mur test est représenté par un circuit 2R1C avec un seul état. Le transfert thermique dans le mur est illustré en Figure IV.3-2.

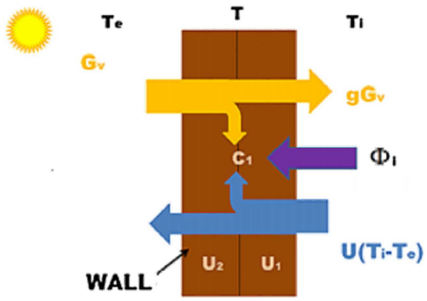


Figure IV.3-2 : Schéma de conservation de flux dans le mur test

Deux formulations des équations du système seront utilisées : une formulation à partir d'équations différentielles ordinaires (EDO), puis dans un second temps à partir d'équations différentielles stochastiques (EDS).

IV.3.3.a Équations différentielles ordinaires

De manière générale, les modèles de représentation d'état (circuit RC) utilisent la formulation EDO pour décrire le transfert thermique dans la paroi. Comme le mur est discrétisé en éléments discontinus (résistances et capacités), on perd la continuité spatiale des équations originales, néanmoins on considère que le champ de température entre deux nœuds adjacents est linéaire. Le système d'équations EDO décrit alors un modèle déterministe continu dans le temps des états du système.
Le mur test est modélisé par le logiciel LORD [19], il est décrit par le circuit 2R1C suivant :

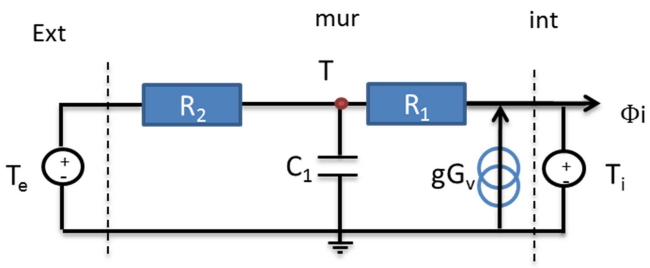


Figure IV.3-3 : Circuit 2R1C (formulation EDO)

Les équations traduisant le bilan des flux du modèle sont :

$$C_1 \frac{dT}{dt} = \frac{T_e - T}{R_2} + \frac{T_i - T}{R_1} \tag{IV.12}$$

$$\Phi_i = (T_i - T)/R_1 - gG_v \tag{IV.13}$$

L'équation (IV.12) s'appelle l'équation d'état et traduit le bilan des flux en T (variable d'état du système) et l'équation (IV.13) s'appelle l'équation de mesure, elle relie la densité de flux thermique mesurée expérimentalement de façon discrète à la variable d'état. Φ_i est appelée variable de sortie car elle est à la fois mesurée et calculée. La valeur RMS (Root Mean Square) est choisie pour déterminer la déviation entre la valeur calculée de Φ_i et sa mesure expérimentale :

$$V = RMS(\widehat{\Phi_i} - \Phi_i) = \sqrt{\frac{1}{N}\left(\widehat{\Phi_i} - \Phi_i\right)^2} \tag{IV.14}$$

avec V la fonction objective, $\widehat{\Phi_i}$ la densité de flux thermique mesurée et Φ_i la densité de flux thermique calculée et N le nombre de points de mesures.

Cette fonction objective est alors minimisée en utilisant une combinaison des méthodes Downhill Simplex [20] et Monte-Carlo [21] (voir Annexe 6 pour plus de détails), effectuée par le logiciel LORD [19]. Les paramètres inconnus (C_1, T, R_1, R_2, g) (ou vecteur paramètres) sont alors calibrés jusqu'à obtenir la meilleure conformité entre $\widehat{\Phi_i}$ et Φ_i.
La capacité C_1 ($J \cdot K^{-1}$) et le facteur de transmission solaire g sont identifiés directement.
L'identification des résistances R_1 et R_2 permet de calculer le coefficient de transmission thermique du mur U ($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$):

$$U = 1/(R_1 + R_2) \tag{IV.15}$$

L'identification des paramètres seule ne donne pas d'information sur la qualité de l'estimation. C'est pourquoi les résultats seront donnés avec un intervalle de confiance. Cet intervalle de confiance est défini par les courbes iso-V, *i.e.* la fonction objective V pour tous les vecteurs paramètres identifiés inférieurs à V_{Max} (Figure IV.3-4).

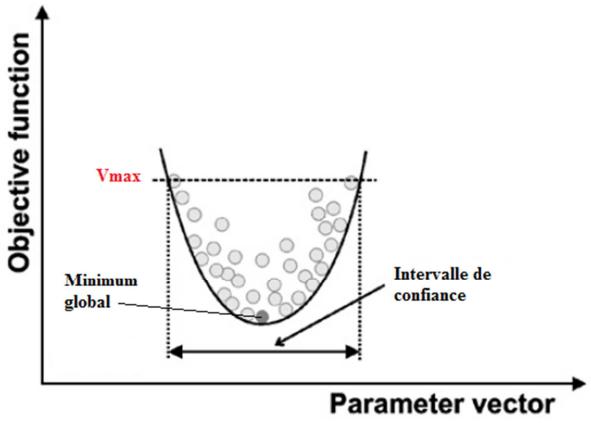


Figure IV.3-4: Intervalle de confiance des paramètres identifiés

V_{Max} est calculé d'après [22] :

$$V_{Max} = V_0 \sqrt{1 + \frac{F(m,n,s)m}{N-m}} \tag{IV.16}$$

avec V_0 le minimum de la fonction objective, $F(m,n,s)$ la loi de Fischer, m le nombre de paramètres variables, N le nombre de points de mesures et s le degré de certitude.

Parfois l'intervalle de confiance calculé pour les paramètres individuels peut être anormalement grand. Cela ne signifie pas nécessairement que la régression est mauvaise ou que les résultats finaux de U comportent des erreurs importantes. D'après l'équation (IV.15), il existe un grand nombre de combinaisons R_1, R_2 possibles pour le calcul de U. Ainsi l'intervalle de confiance de ces paramètres sera grand. L'explication de ce phénomène provient de la corrélation entre R_1 et R_2. Si l'une des deux résistances a une valeur élevée, l'autre aura une valeur faible. Une bonne modélisation du système thermique devra alors minimiser les effets de corrélation entre les paramètres (voir plus en détail dans la partie IV.3.3.c « Validiation des modèles »).

IV.3.3.b Équations différentielles stochastiques

Pour des systèmes thermiques plus réels, les états du système ne peuvent pas être prédits de manière exacte et déterministe. Les équations (IV.12),(IV.13) ne sont pas capables de prédire de manière exacte le comportement futur des états du système, car les données expérimentales sont bruitées et contiennent des erreurs dues à la précision limitée des capteurs et aux fluctuations statistiques. Pour décrire la déviation entre les équations (IV.12),(IV.13) et la variation réelle des états du système, un terme de bruit est introduit. On obtient alors les équations stochastiques suivantes:

$$C_1 dT = \left(\frac{T_e - T}{R_2} + \frac{T_i - T}{R_1}\right) dt + \sigma d\omega \tag{IV.17}$$

$$\Phi_i = (T_i - T)/R_1 - gG_v + e \tag{IV.18}$$

$\sigma d\omega$ est le terme de bruit de l'équation d'état. ω est un processus de Wiener de variance σ. L'introduction de ce terme de bruit permet de prendre en compte les approximations du modèle, *e.g.* la non prise en compte des rayonnements grandes longueurs d'onde, et le bruit des données expérimentales. e est le terme de bruit de l'équation de mesure, caractérisé par un bruit blanc Gaussien. Il prend en compte uniquement le bruit sur les mesures expérimentales. De plus en remplaçant g par sa définition de l'équation (IV.2), on obtient l'équation de mesure suivante :

$$\Phi_i = (T_i - T)/R_1 - \frac{\alpha U G_v}{h_e} + e \qquad \text{(IV.19)}$$

On peut alors identifier deux nouveaux paramètres du système thermique « mur test », son absorptance solaire α et son coefficient d'échange superficiel extérieur h_e.

L'importance de la prise en compte du bruit de mesures est illustrée en Figure IV.3-5 qui montre la fonction objective en fonction du vecteur paramètre. Dans le cas réel, le bruit de mesure cause une dispersion des valeurs de la fonction objective calculée et dans certains cas le minimum global calculé n'est pas la vraie solution. Un simple algorithme ne prenant pas en compte le bruit pourra seulement trouver ce minimum global, en réalité loin de la vraie solution.

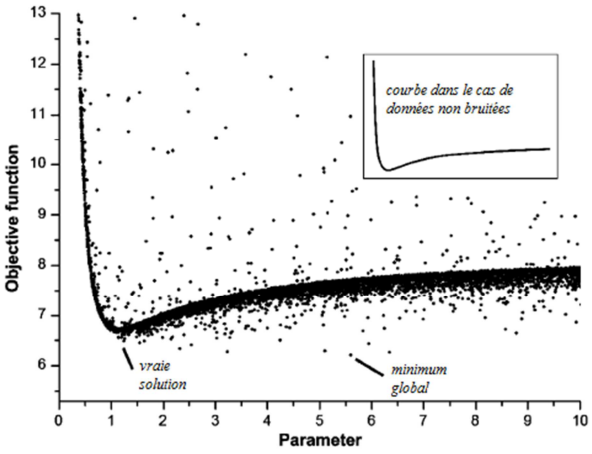


Figure IV.3-5: Problèmes associés aux données bruitées pour l'estimation des paramètres

La description stochastique du système d'équations est propice à l'utilisation de méthodes d'estimation statistiques pour l'identification des paramètres. Nous utiliserons la méthode du maximum de vraisemblance (ou *Maximum Likehood*) dont les principes sont résumés ci-dessous. Pour plus de détails sur cette méthode, se reporter à l'Annexe 6.

En considérant le vecteur de mesure de densité de flux thermique au temps t_k :

$\boldsymbol{Q_{i,t_k}} = [Q_{i,t_k}, Q_{i,t_{k-1}}, \dots, Q_{i,t_1}, Q_{i,t_0}]$, la fonction vraisemblance se définit comme le produit des densités de probabilité suivantes :

$$L(\theta, \boldsymbol{Q_{i,t_N}}) = (\prod_{k=1}^{N} p(Q_{i,t_k} | \boldsymbol{Q_{i,t_{k-1}}}, \theta)) p(Q_{i,t_0} | \theta) \qquad \text{(IV.20)}$$

avec $p(Q_{i,t_k}|\boldsymbol{Q_{i,t_{k-1}}},\theta)$ la probabilité conditionnelle d'observer Q_{i,t_k} à partir des observations précédentes $\boldsymbol{Q_{i,t_{k-1}}}$ et du paramètre θ, $p(Q_{i,t_0}|\,\theta)$ est la paramétrisation des conditions initiales. L'estimation des paramètres inconnus est effectuée en trouvant le paramètre $\hat{\theta}$ qui maximise la fonction de vraisemblance :

$$\hat{\theta} = argmax_{\theta}[L(\theta, \boldsymbol{Q_{i,t_N}})] \tag{IV.21}$$

L'estimation des paramètres via la méthode du maximum de vraisemblance est réalisé sur le logiciel CTSM-R [23]. L'application de cette méthode permet également de calculer l'incertitude des paramètres estimés à partir du calcul de la matrice de covariance de θ. Le vecteur σ_θ qui est la diagonale de la matrice de covariance représente les écarts types moyens des paramètres estimés. Il est utilisé pour calculer les intervalles de confiances à 95 % des paramètres identifiés :

$$[\theta_{2,5\%}, \theta_{97,5\%}] = [\hat{\theta} - 2\sigma_\theta\ , \hat{\theta} + 2\sigma_\theta] \tag{IV.22}$$

$$[U_{2,5\%}\ , U_{97,5\%}] = [U(\theta_{2,5\%}), U(\theta_{97,5\%})\ ] \tag{IV.23}$$

IV.3.3.c Validation des modèles utilisés pour l'identification des paramètres via les méthodes dynamiques

Dans cette partie, nous nous intéressons aux techniques qui permettent de valider l'utilisation de notre modèle (discrétisation du mur en circuit RC). Si ces techniques s'appliquent correctement, alors on peut assurer que le modèle choisi fonctionne et donc que les paramètres estimés ont du sens. Nous avons vu que le choix de la discrétisation du mur test et l'ordre du modèle est propre à chacun. Nous introduirons ici quelques notions clés pour valider ces modèles. En particulier, l'utilisation d'équations stochastiques permet l'utilisation d'outils statistiques simples.

Les méthodologies et critères suivants seront utilisés :

- Un test de Student permettra de nous donner la p-valeur p(>|t|) qui correspond à la probabilité que les résultats obtenus soient dus aux fluctuations statistiques aléatoires. On prendra comme limite une p-valeur de 5 % pour considérer que le résultat est statistiquement significatif.
- La dérivée de la fonction objective par rapport aux paramètres dV/dPar doit être proche de 0. Dans le cas contraire, il se peut que le minimum trouvé ne soit pas le minimum global. Il faut alors changer les conditions initiales et/ou les conditions limites.
- La dérivée de la fonction pénalité par rapport aux paramètres dP/dPar doit être inférieure à dV/dPar. Dans le cas contraire, les paramètres estimés sont trop proches des limites fixées, il faut étendre celles-ci. La définition de la fonction pénalité peut être trouvée dans [23].

- La matrice de corrélation des paramètres estimés ne doit pas avoir de valeur absolue supérieure à 0,98. Dans le cas contraire, certains paramètres sont corrélés entre eux et le modèle est surparamétrisé, il convient alors de le simplifier.
- Les résidus entre les variables estimées et les variables mesurées doivent idéalement fluctuer de façon aléatoire autour de 0, *i.e.* un bruit blanc. La fonction d'autocorrélation (ACF) des résidus sera utilisée comme critère pour évaluer le degré de déviation des résidus par rapport au bruit blanc. Nous considèrerons que les résidus sont un bruit blanc si pas plus de 10 % d'entre eux excèdent l'intervalle de confiance à 95 % du bruit blanc. Si le test de bruit blanc échoue, cela indique que le modèle est trop simple, et qu'il faut augmenter son ordre en ajoutant des états. On utilisera également la fonction « Cumulated periodogram » pour visualiser l'autocorrélation dans le domaine fréquentiel. Cette fonction est très utile pour détecter un comportement cyclique des résidus. Souvent, un comportement cyclique d'une période de 24 h correspond à un problème sur l'influence du rayonnement solaire sur la paroi.
- Les résidus entre les variables du modèle et les variables d'entrées ne doivent pas être corrélés. La fonction de Cross-Correlation (CCF) permet de vérifier l'importance de ces corrélations via le même critère que la fonction ACF. Si une variable d'entrée est corrélée aux résidus du modèle, alors il faut l'inclure dans le modèle.

Au-delà de ces tests statistiques, les paramètres estimés doivent être évalués à partir du bon sens physique. L'identification des paramètres sera effectuée sur les multiples séries de données et sur des séries de données consécutives pour croiser les résultats. Un modèle consistant devrait donner des résultats similaires.

IV.4 Résultats expérimentaux de la campagne de mesures

IV.4.1. Déperditions thermiques et coefficient de transfert thermique du mur test

Une première façon d'évaluer l'efficacité du système d'isolation thermique intérieur est de mesurer les déperditions thermiques à travers la paroi. Comme celles-ci dépendent essentiellement de la différence de température entre l'extérieur et l'intérieur de la cellule test, on les représente en fonction du gradient de température. Pour s'affranchir de l'effet capacitif du mur, les mesures de flux et de température sont moyennées par mois, ce qui correspond environ à deux séries de données consécutives (voir Tableau IV.2-1). Les résultats sont présentés sur la Figure IV.4-1, en orange pour le cas *Baseline* et en vert pour le cas du *Retrofit*. On observe une corrélation linéaire entre flux thermique et gradient de température comme le prédit la théorie.

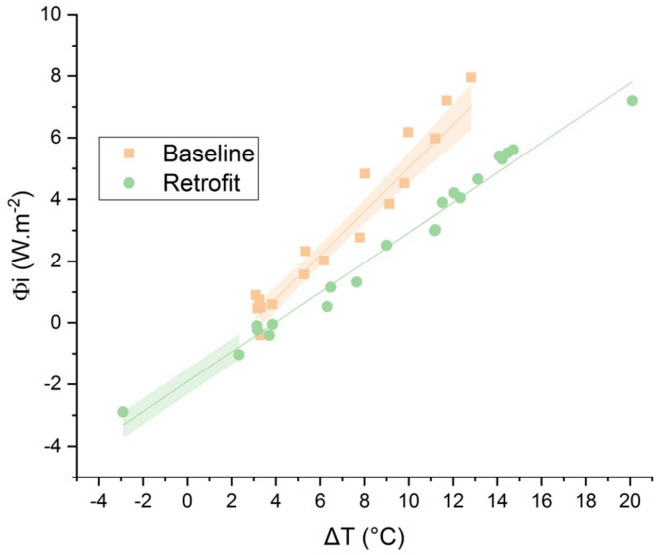


Figure IV.4-1:Déperditions thermiques à travers le mur test en fonction du gradient de température

En associant ces résultats avec le modèle de l'équation (IV.11) : $\overline{\Phi_i} \cong U\left(\overline{T_i} - \overline{T_e}\right) - g\overline{G_v}$, on peut identifier la pente de la courbe à la valeur U et l'ordonnée à l'origine à l'influence du rayonnement solaire $g\overline{G_v}$. On trouve pour le coefficient de transmission thermique $U_{baseline} = 0{,}70 \pm 0{,}08$ W · m^{-2} · K^{-1} et $U_{retrofit} = 0{,}48 \pm 0{,}04$ W · m^{-2} · K^{-1} et pour le coefficient de transmission solaire $g_{baseline} = 0{,}024 \pm 0{,}005$ et $g_{retrofit} = 0{,}025 \pm 0{,}003$. Les résultats de U et g obtenus de cette manière sont grossiers, car ils dépendent fortement du temps d'échantillonnage choisi. De plus, la régression linéaire effectuée est questionnable, car son coefficient de corrélation R^2 est de seulement 0,90, ce qui nous donne des résultats avec une incertitude conséquente.

Qualitativement, on voit bien que la présence du système d'isolation diminue nettement les déperditions thermiques pendant la période de chauffe ($\Delta T > 7$ °C) et n'affecte que très peu le facteur de transmission solaire du mur.

En mesurant la densité de flux thermique sur la surface intérieure Φ_7 (plaque de plâtre) et celle sur la surface intérieure du pare-vapeur Φ_8, nous nous sommes rendus compte que cette derniere était systématiquement plus faible : $\Phi_7 > \Phi_8$ (voir Figure IV.4-2). Ce résultat est en contradiction avec la théorie des transferts thermiques unidimensionnels dans une paroi pour laquelle $\Phi_8 \sim \Phi_7$. La raison provient de la présence de la lame d'air hyper-ventilée et de la forte infiltration d'air dans la cellule. Le transfert thermique n'est alors plus unidimensionnel à cause des effets de convection (naturelle et forcée) dans la lame d'air, et seulement une fraction de Φ_8 atteint la surface intérieure du pare-vapeur, le reste du flux constitue les pertes latérales, favorisées par la forte perméance de la cellule et le pont thermique côté Ouest du mur (voir Figure IV.1-6). En parallèle, la température de la cellule et celle de la lame d'air sont très proches, on se retrouve alors avec une paroi ayant une résistance thermique plus élevée si l'on enlève la couche de finition intérieure et la lame d'air.

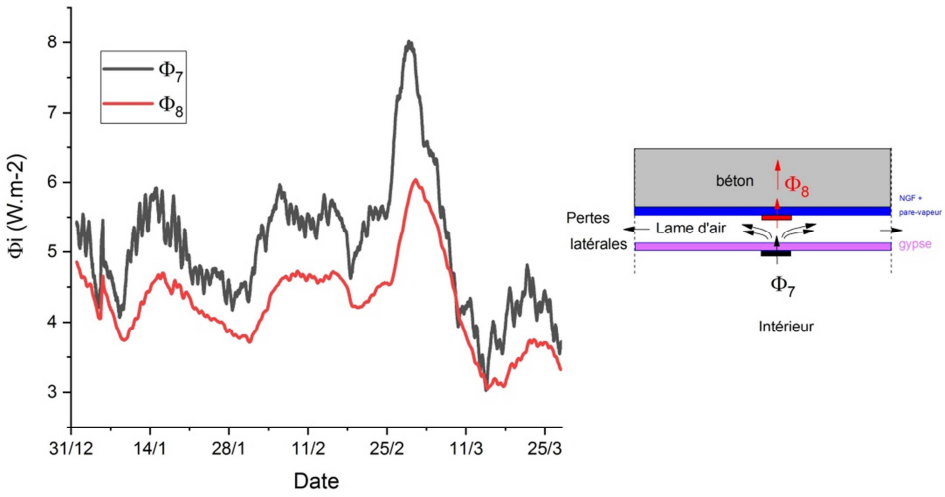


Figure IV.4-2: Problème de mesures lié à la présence de la lame d'air

Ce problème n'est pas caractéristique du système, mais il est plutôt induit par la forte perméance à l'air de la cellule et l'épaisseur trop importante de la lame d'air. De plus, les effets convectifs causent de nombreux problèmes de convergence pour le calcul du *U-value*. Pour nous en affranchir, nous avons décidé de retirer la plaque de plâtre intérieure et de nous concentrer uniquement sur la paroi constituée de l'enduit extérieur, du mur en béton, de l'isolant NGF et du pare-vapeur. Par la suite, tous les résultats présentés concerneront cette « nouvelle » paroi.

Calculs du U en régime permanent

Le calcul du *U-value* est privilégié sur les périodes de chauffe, lorsque la température extérieure maximise le flux thermique. Le calcul du *U-value* en utilisant la méthode *average* de la norme

ISO 9869 a été mené de janvier à avril 2017 (séries 4b-10b) pour le cas *baseline* et de janvier à avril 2018 (séries 10r-16r) pour le cas *retrofit*. Les résultats de convergence de la méthode sont présentés en Figure IV.4-3. La méthode *average* nécessite 1 à 3 mois de mesure pour converger vers une valeur finale de U.

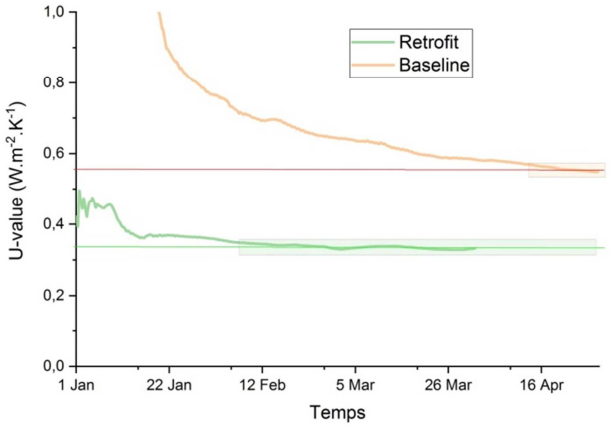


Figure IV.4-3: Convergence du calcul du *U-value* d'après la méthode *average* de la norme ISO9869

Les résultats de *U-value* et de résistance thermique totale de la paroi sont présentés sur le Tableau IV.4-1. L'ajout du système isolant a augmenté la résistance thermique totale de 1,82 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$ à 3,03 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$. Les inconvénients majeurs de cette méthode restent le temps nécessaire d'acquisition pour obtenir une valeur de U et la faible précision des résultats (15 % au mieux d'après la norme).

Paramètre	**Baseline**	**Retrofit**
U ($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$)	0,55 ±15 %	0,33 ±15 %
R_T ($m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)	1,82 ±7 %	3,03 ±5 %

Tableau IV.4-1 : Résumé des résultats de *U-value* et de résistance thermique totale en utilisant la méthode *average*

De plus, on rappelle que le modèle utilisé pour calculer le *U-value* ne prend pas en compte le rayonnement solaire incident sur la surface extérieure ; or celui-ci est bien présent. Cela a pour effet de sous-estimer le calcul du U, puisqu'une partie du flux thermique arrivant sur la surface intérieure en provenence du mur est due à ce rayonnement solaire. Ce défaut de la méthode *average* est illustré en Figure IV.4-4. La pente de la droite, qui correspond au *U-value*, est plus importante dans le cas réel qu'avec la méthode *average* : $U_{average} < U_{réel}$ et $R_{réel} < R_{average}$. Cette différence est d'autant plus notable pour des murs ayant un facteur de transmission solaire important (murs légers par exemple).

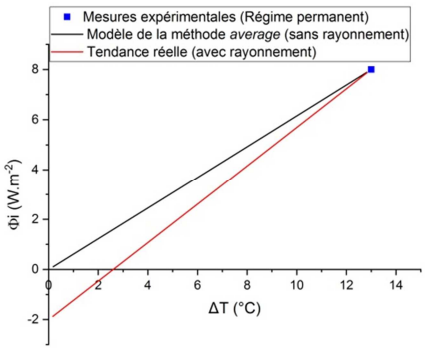


Figure IV.4-4 : Défaut de la méthode *average* pour le calcul du *U-value*

Pour corriger ce défaut, on se propose de recalculer le *U-value* en prenant en compte le rayonnement solaire, par le biais de l'équation (IV.11). L'équation reste uniquement valable en régime permanent, il faut alors reéchantillonner nos données en filtrant les effets dynamiques. Les périodes d'échantillonnage suivantes ont été testées : 1 jour, 3 jours, 10 jours et 1 mois. Les résultats de régressions linéaires entre les données expérimentales et l'équation (IV.11) sont présentés dans le tableau ci-dessous. U est donné en $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$, le coefficient de transmission solaire g est sans unité, et **R** est le coefficient de corrélation, sans unité

Temps d'échantillonnage	**Baseline**	**Retrofit**
Données brutes	U = 0,53 ±8% g = 0 R^2 = 0,78	U = 0,30 ±0,5% g = 0 R^2 = 0,94
1 jour	U = 0,58 ±7% g = 0 R^2 = 0,89	U = 0,30 ±0,5% g = 0 R^2 = 0,96
3 jours	U = 0,67 ± 5% g = 0,015 ±22% R^2 = 0,96	U = 0,27 ±0,5% g = 0 R^2 = 0,97
10 jours	U = 0,69 ±0,3% g = 0,02 ±0,5% **R^2 = 0,99**	U = 0,35 ±0,4% g = 0,004 ±5% **R^2 = 0,99**
1 mois	U = 0,69 ±0,2% g = 0,02 ±0,5% **R^2 = 0,99**	U = 0,38 ±0,4% g = 0,014 ±2% **R^2 = 0,99**

Tableau IV.4-2 :Résultats de *U-value* ($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$) et *g-value* avec la méthode de la régression linéaire (Équation (IV.11))

En augmentant le temps d'échantillonnage, on obtient des régressions de plus en plus fiables, quantifiées par le coefficient de corrélation R^2. Pour un temps d'échantillonnage supérieur à 10 jours, la qualité de la régression est très bonne $R^2 > 0,99$ et on observe peu de changement sur la valeur des paramètres identifiés. La méthode de la régression linéaire corrige le biais de la

méthode *average* en intégrant l'effet du rayonnement solaire et permet d'identifier le *g-value* du mur. Les valeurs de U calculées avec cette méthode sont ainsi supérieures à celles de la méthode *average.* On retiendra les valeurs de résistances thermiques suivantes : $R_{baseline} = 1{,}45\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1} \cdot K$ et $R_{retrofit} = 2{,}63\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$.
La méthode de la régression linéaire en régime permanent améliore considérablement la justesse des résultats et leur précision, mais nécessite encore 1 à 3 mois d'acquisition de données pour obtenir un résultat correct.

Calculs du U en régime dynamique

Dans cette partie, le *U-value* est calculé selon les deux méthodes dynamiques présentées dans la partie IV.3.3. Nous commencerons par montrer les résultats obtenus avec le logiciel LORD en utilisant un circuit RC du 1er ordre décrit par des équations différentielles ordinaires (EDO). Dans un second temps, nous présenterons les résultats obtenus avec le logiciel R, utilisant un circuit RC du 1er ordre décrit par des équations différentielles stochastiques. La différence principale avec les méthodes en régime permanent est que les modèles utilisés prennent en compte l'effet capacitif du mur. Le *U-value* peut alors être déterminé en régime transitoire en n'utilisant que peu de données. La convergence des méthodes dynamiques est d'environ une semaine pour le cas de notre mur test. L'estimation du *U-value* via les méthodes dynamiques est présentée en Figure IV.4-5. L'estimation est réalisée sur les séries où la température de consigne est imposée : 4b-10b pour le cas *baseline* et 1r-16r pour le cas *retrofit*. Le modèle du 1er ordre utilisé a été jugé adéquat pour l'estimation des paramètres compte tenu des résidus obtenus. Un modèle d'ordre supérieur n'améliore pas significativement la qualité de la régression et les résultats obtenus. Dans certains cas, même les modèles plus complexes ont tendance à surparamétriser. La validation de différents modèles pourra être trouvée en Annexe 7 selon les critères du paragraphe IV.3.3.c.

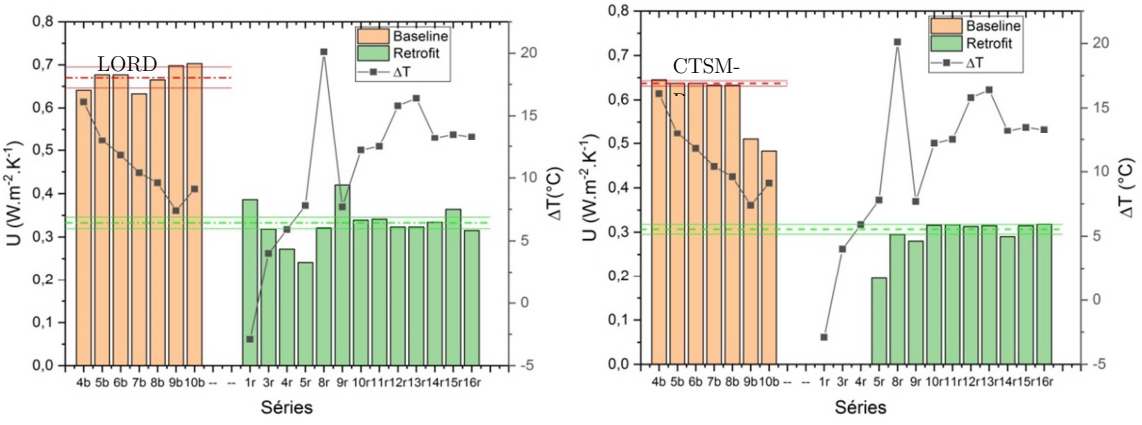


Figure IV.4-5 : Estimation du *U-value* par méthodes dynamiques. L'estimation est faite avec les EDO et le logiciel LORD (gauche), et avec les EDS et logiciel R (droite). Les lignes pointillées correspondent à la moyenne des séries retenues et les lignes pleines aux intervalles de confiances à 95 %. Pour chaque série, la valeur de U estimée par régression est donnée avec une précision d'environ 0,5 %.

Les résultats de *U-value* et résistance thermique sont résumés ci-dessous :

U-value **($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$)**	**Baseline**	**Retrofit**
LORD	U = 0,67 ±7% R = 1,49 ±3%	U = 0,33 ±9% R = 3,03 ±1%
CTSM-R	U = 0,64 ±1% R = 1,56 ±0,5%	U = 0,31 ±9% R = 3,22 ±1%

Tableau IV.4-3 : *U-value* calculé avec les méthodes dynamiques. L'erreur correspond à l'erreur statistique entre les séries de mesures.

Le modèle fait sur LORD et celui de CTSM-R donnent des résultats assez similaires. Les moyennes données en Tableau IV.4-3 sont calculées sur les séries dont le gradient de température est supérieur à 10 °C. Pour les séries où le gradient n'est pas suffisant, on remarque que les valeurs de U calculées sont assez éloignées de la moyenne. Cet effet peut être expliqué par un plus faible ratio signal/bruit, car durant ces périodes plus chaudes, le flux thermique mesuré est plus faible. Il peut aussi être attribué au rayonnement grandes longueurs d'onde, plus forts durant l'été. La non mesure du rayonnement grandes longueurs d'onde conduit à une sous-estimation du *U-value*.

Les deux méthodes sont équivalentes d'un point de vue des résultats. La méthode avec CTSM-R est plus précise dans le cas *baseline* mais semble plus sensible au gradient de température. De plus, quand celui-ci est vraiment trop faible (séries 1r-3r-4r), le modèle ne converge pas.

L'utilisation des modèles dynamiques confirme la faiblesse de la méthode *average* avec des résultats de U plus élevés, en particulier lorsque le rayonnement solaire n'est pas négligeable (cas *baseline*). Ces méthodes sont pratiques, car elles peuvent être utilisées sur des périodes d'acquisition inférieures à 2 semaines. Cela nous a permis de calculer le *U-value* sur un nombre important de séries distinctes et de minimiser l'effet des fluctuations statistiques sur les résultats finaux.

Bien que nous ayons considéré le *U-value* comme constant, il ne faut pas oublier que celui-ci peut en toute rigueur varier en fonction des coefficients d'échange superficiels – et donc du vent –, et de l'humidité dans le mur, ce qui explique en partie les fluctuations d'une série à une autre. Compte tenu de tous les résultats significatifs des méthodes dynamiques et de la méthode de la régression linéaire en régime permanent, les choix définitifs de résistance thermique du mur test sont les suivants :

$R_{baseline} = 1{,}5\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$ et $R_{retrofit} = 3\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$.

On obtient donc la résistance thermique du système d'isolation seule par simple soustraction :

$\boldsymbol{R_{syst} = 1{,}5\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}}$.

Sachant que l'épaisseur de NGF installé sur site est de 2,5 cm, on peut calculer la conductivité thermique *in situ* de l'isolant en négligeant la résistance thermique des autres couches (Pare-vapeur et PE) : $\lambda_{in-situ} = 0{,}0167\ W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. La valeur *in situ* de conductivité thermique du NGF calculée de la sorte est très proche de celle mesurée en laboratoire. Cette correspondance

montre bien que la pose du système a été faite correctement, qu'aucune dégradation ou aucun pont thermique inattendu ne viennent perturber l'efficience thermique de l'isolant.
Connaissant maintenant la résistance thermique du mur test et du système d'isolation, on peut évaluer la performance du système par rapport aux réglementations thermiques actuelles. On peut considérer le cas *baseline* du mur test comme un mur faiblement isolé ($R = 1{,}5\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$) comme ceux de la plupart des bâtiments construits au cours des années 70-80. Le Tableau IV.4-4 rappelle les recommandations des réglementations thermiques actuelles en termes de résistance thermique des parois verticales exterieures. La « RT existant » concerne la réhabilitation de bâtiments existants, et la RT 2012 et 2020 concernent les bâtiments neufs construits après 2012 et 2020, respectivement.

	RT existant	RT 2012	RT 2020
Rmin ($m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)	$>$ 2,2	$>$ 4	$>$ 5
Mur test ($R = 3\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)	✓	X	X
Isolation intérieure uniquement réalisée en blanket NGF Epaisseur minimale de *blanket* NGF	$>$ 3,4 cm	$>$ 6,2 cm	$>$ 7,7 cm

Tableau IV.4-4 : Performances du système d'isolation selon les réglementations actuelles

Dans le cas de la réhabilitation d'un bâtiment existant faiblement isolé, l'utilisation du système d'isolation Trocellen tel qu'installé dans la cellule test est en adéquation avec la RT existant. Le système n'est cependant pas assez isolant pour une installation en bâtiment neuf vis-à-vis des RT 2012 et 2020. Le Tableau IV.4-4 montre également l'épaisseur de *blanket* NGF nécessaire pour respecter les réglementations thermiques pour une isolation réalisée uniquement avec le *blanket* NGF. Grâce à sa faible conductivité thermique, l'isolation nécessite moins de 10 cm pour respecter toutes les RT contre 20 cm pour la plupart des isolants conventionnels.

IV.4.2. Identifications des paramètres secondaires de la cellule test

L'utilisation des modèles dynamiques permet l'identification de paramètres physiques secondaires du mur test tels que sa capacité thermique effective ou son facteur de transmission solaire. Le logiciel LORD permet de construire le circuit RC souhaité via une interface simpliste. En indiquant le nœud de température intérieure, extérieure et le nœud recevant le rayonnement solaire, LORD calcule automatiquement la capacité thermique effective et le facteur de transmission solaire de la paroi en plus du *U-value*. Les résultats sont présentés sur la Figure IV.4-6 pour les séries 5b-10b du cas *baseline* et 12r-16r du cas *retrofit*.

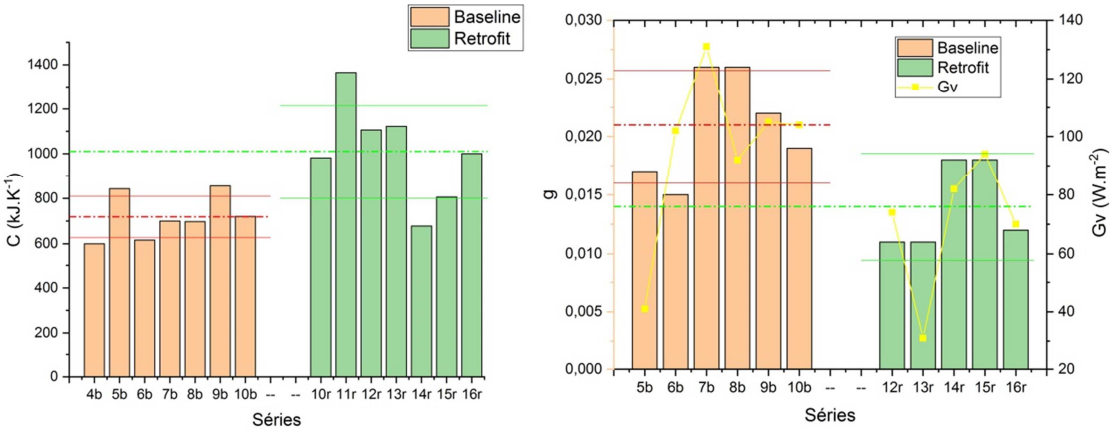


Figure IV.4-6 : Identification de paramètres secondaires du mur test avec LORD : (gauche) Capacité thermique effective, (droite) *g-value* et rayonnement global vertical. Les lignes pointillées correspondent aux moyennes des paramètres sur l'ensemble des séries et les lignes pleines aux intervalles de confiances à 95 %.

On observe une grande dispersion des valeurs de capacité thermique effective identifiées selon les séries. La capacité thermique effective moyenne est de 720 $kJ \cdot K^{-1}$ pour le cas *Baseline* et 1010 $kJ \cdot K^{-1}$ pour le cas *retrofit.* L'identification du *g-value* avec LORD donne des résultats similaires à ceux de la régression linéaire de la méthode du régime permanent. On trouve respectivement, $g_{baseline} = 0{,}021$ et $g_{retrofit} = 0{,}014$. Ces valeurs sont très faibles en raison de la forte inertie du mur. Les marges d'erreur importantes sur l'identification ne nous permettent pas de conclure franchement sur l'impact du système d'isolation sur ces deux paramètres. On dispose néanmoins d'un ordre de grandeur de ces paramètres et d'une tendance d'évolution.

Le *package* CTSM du logiciel R permet de modéliser des systèmes d'équations stochastiques et d'estimer des paramètres via la méthode du maximum de vraisemblance. Il offre une plus grande souplesse d'utilisation que LORD avec notamment la possibilité de décrire n'importe quel phénomène physique via une écriture personnalisée des équations. En intégrant dans les équations de conservation de flux thermique l'absorptance solaire et le coefficient d'échange superficiel de la paroi extérieure, on peut identifier ces deux nouveaux paramètres.

Les résultats d'identifications avec CTSM-R sont présentés en Figure IV.4-7.

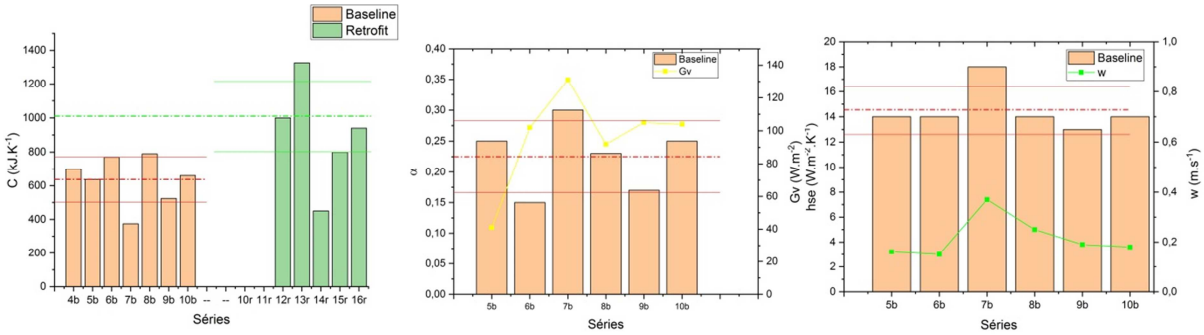


Figure IV.4-7: Identification des paramètres secondaires du mur test avec CTSM-R. (gauche) : capacité thermique effective, (milieu) : absorptance solaire de la surface extérieure et rayonnement solaire global vertical, (droite) : coefficient d'échange superficiel de la surface extérieure et vitesse de vent.

Comme avec LORD, les résultats de capacité thermique effective du mur test sont très dispersés. On obtient une moyenne de 636 kJ · K^{-1} pour le cas *baseline* et 1008 kJ · K^{-1} pour le cas *retrofit*. On peut noter que les valeurs de capacité thermique effective identifiées pour le cas retrofit sont très proches (respectivement 1010 et 1008 kJ · K^{-1}). L'absorptance solaire et le coefficient d'échange superficiel de la surface extérieure ont été calculés pour le cas *baseline* uniquement. L'absorptance solaire vaut $\alpha = 0{,}23 \pm 0{,}1$, valeur commune pour une surface peinte en blanc. Le coefficient d'échange superficiel vaut $h_e = 14{,}5 \pm 3$ W · m^{-2} · K^{-1}, proche des valeurs typiques de la littérature. On peut le considérer comme constant pour toutes les séries de mesures car le vent est peu fréquent et faible.

IV.4.3. Déphasage et facteur d'amortissement

Le déphasage et le facteur d'amortissement permettent de décrire le comportement thermique dynamique d'un mur. En général, si le déphasage est grand et le facteur d'amortissement est faible, les fluctuations de la température intérieure seront faibles, et le confort thermique de la pièce sera amélioré. Dans la littérature, les études de déphasage et de facteur d'amortissement de parois sont presque exclusivement faites de manière numérique et les propriétés physiques du mur sont considérées comme connues. Or, nous savons que dans la plupart des cas, les propriétés thermophysiques d'un mur sur site peuvent largement différer de celles annoncées avant la construction. Nous avons donc choisi une approche expérimentale pour déterminer le déphasage ϕ et le facteur d'amortissement f du mur test. On a vu dans le chapitre « État de l'art » qu'il existait plusieurs définitions de f et ϕ en fonction des auteurs. Pour notre approche expérimentale, leur calcul a été fait avec les températures de surfaces intérieures et extérieures en conditions « *Free-Floating* » avec prise en compte du rayonnement solaire. Cela permet de maximiser les fluctuations de température intérieure et donc de minimiser les erreurs de mesure dues à la précision des capteurs et au bruit. Les mesures ont été faites sur 3 séries en hiver (1b à 3b) et 6 séries en été (11b à 16b) pour le cas *baseline*, et sur 3 séries en automne (6r,7r,9r) et 6 séries en été pour le cas *retrofit* (18r à 23r). La Figure IV.4-8 montre les variations de température mesurées pour les séries 2b, 14b, 9r, 21r. La température de surface extérieure est fortement corrélée au cycle diurne du rayonnement solaire. Elle est caractérisée

par une élévation dès l'aube (Tse min) jusqu'à atteindre son maximum vers 14:30 (Tse max). Il s'en suit une baisse de la température de surface extérieure jusqu'à l'aube du lendemain. La température de surface intérieure atteint son minimum aux alentours de 12:00 puis croît lentement jusqu'à atteindre son maximum vers 22:00, pour ensuite redescendre jusqu'à 12:00 le lendemain.

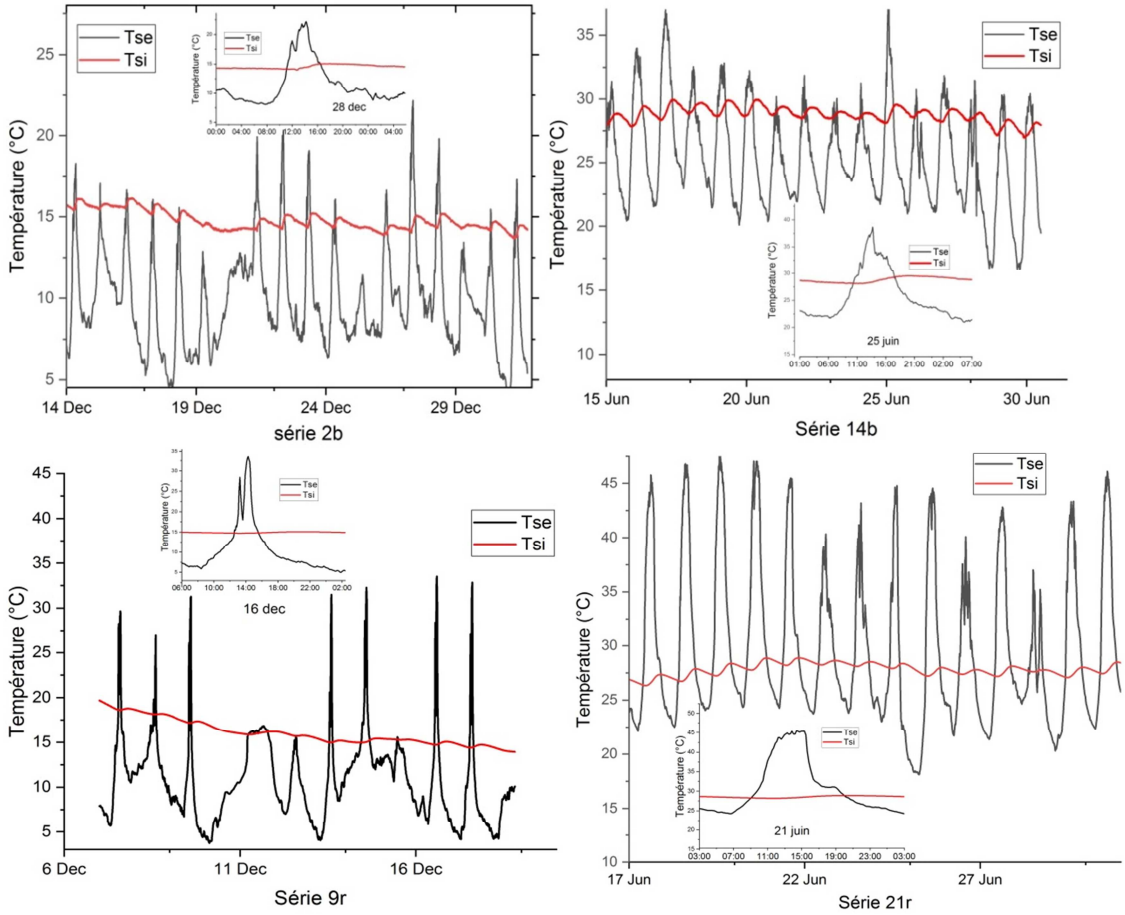


Figure IV.4-8: Variation de la température de surface intérieure (Tsi) et extérieure (Tse) pour la série 2b (*baseline*, hiver), la série 14b (*baseline*, été), la série 9r (*retrofit*, hiver) et la série 21r (*retrofit*, été)

Le calcul du facteur d'amortissement et du déphasage est effectué pour chaque journée, puis l'ensemble des valeurs est moyenné par série. Les résultats par série sont présentés en Figure IV.4-9. On voit une disparité importante des valeurs de facteur d'amortissement pour le cas *baseline*. En moyenne, le facteur d'amortissement vaut 0,030 pour le cas *baseline* et 0,040 pour le cas *retrofit*. Les valeurs d'amortissement peuvent être considérées comme suffisamment faibles ($f < 0{,}30$) pour obtenir une réduction significative des pics de chaleur en été et par la même occasion de la puissance des systèmes de climatisations. Ces valeurs sont courantes pour des murs ayant une forte inertie thermique ainsi qu'une bonne isolation. Le déphasage du mur est mesuré à 8h30 pour le cas *baseline* et 7h20 pour le cas *retrofit*. En général, il est préférable d'avoir un déphasage d'au moins 10h00 pour les murs (voire 12h00 pour un mur orienté à l'est) afin de tirer profit de l'effet capacitif du mur jusqu'à 22:00–24:00, lorsque la température extérieure redevient plus baisse.

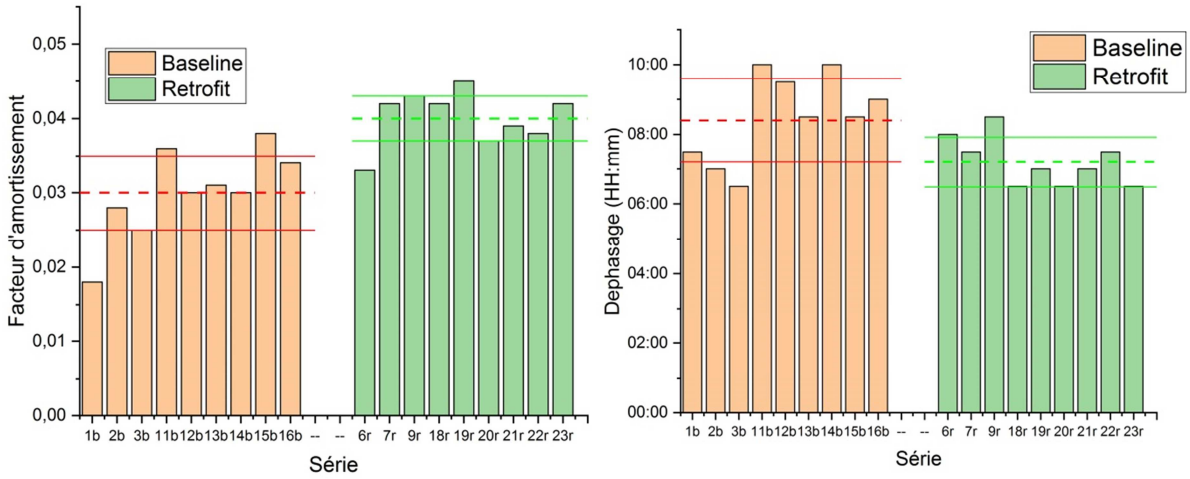


Figure IV.4-9: Facteur et d'amortissement et déphasage du mur test obtenus à partir des résultats expérimentaux (orientation sud)

On remarque une contradiction théorique sur l'évolution des paramètres f et ϕ suite à l'application du système d'isolation intérieur. Théoriquement, on s'attend à ce que l'ajout d'un isolant sur un mur existant réduise le facteur d'amortissement et augmente légèrement le déphasage du mur, grâce à la diminution de la conductivité thermique effective du mur. Dans le cas présent, les données expérimentales montrent la tendance inverse. Une explication possible réside dans la présence de l'enduit extérieur isolant ($\lambda = 0{,}027\ \mathrm{W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$) déjà présent avant la campagne de mesure. Le mur test du cas *baseline* bénéficie déjà d'un faible facteur d'amortissement et l'ajout d'une épaisseur supplémentaire d'isolant n'a que très peu d'effet. La conductivité thermique effective du mur test est de $0{,}17\ \mathrm{W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$ pour le cas *baseline* et diminue à $0{,}10\ \mathrm{W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$ pour le cas *retrofit,* si bien que la variation de f est à peine visible comme l'illustre la figure ci-contre, issues des simulations numériques de Asan [24]. On peut également ajouter l'effet inconnu, mais non négligeable, de l'infiltration d'air dans la cellule. Celle-ci varie selon les séries, en fonction du vent et du gradient de température, et peut avoir des conséquences sur les fluctuations de température de surface intérieure et donc modifier f et ϕ. Cependant, aucune corrélation n'a été observée expérimentalement entre f et la vitesse de vent ou le gradient de température. L'étude expérimentale du facteur d'amortissement et du déphasage n'est pas très concluante. Elle nous permet d'obtenir des ordres de grandeur de f et ϕ pour le mur test, mais l'influence du système isolant sur ces variables n'est pas nette. Il est possible que les différences observées entre les deux cas ne fassent en fait partie que des bruits de mesures et des fluctuations statistiques ou bien des variables non mesurées comme l'infiltration d'air. Pour avoir une idée plus précise de l'effet du système d'isolation sur ces deux paramètres, une étude numérique sera proposée dans le chapitre « Simulations numériques ».

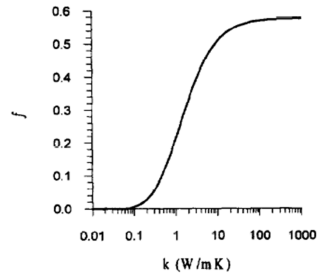


Figure IV.4-10: Facteur d'amortissement en fonction de la conductivité thermique effective d'un mur.

IV.4.4. Confort thermique

Le confort thermique est une notion importante à considérer lors de la conception d'un bâtiment. En particulier, le confort d'été fait partie de l'une des trois exigences majeures de la RT 2012. Dans le cadre réglementaire, le confort d'été est évalué à partir d'une température intérieure conventionnelle Tic. Ce coefficient représente la valeur horaire en période d'occupation de la température opérative et doit être inférieur à une température de référence qui dépend du projet, lors d'une période caniculaire de 5 jours consécutifs. La température intérieure conventionnelle est généralement calculée à partir des règles thermiques bâtiment du CSTB et de logiciels réglementés.

Pour évaluer le confort thermique de notre cellule test, nous utilisons une approche simplifiée basée sur le concept d'indice de confort thermique TCI. L'indice de confort thermique détermine la quantité de degrés-heures passée au-delà de la zone de confort, il s'agit d'un critère qui dépend du temps de mesure considéré. Or, pour des raisons climatiques et pratiques, le découpage temporel des séries de mesure n'est pas identique entre toutes les séries (10 jours à 20 jours). Pour pouvoir comparer le confort thermique entre chacune des séries, on se propose d'utiliser un critère indépendant du temps en divisant le TCI par le temps total de mesure :

$$\overline{\Delta Tc} = \frac{\sum \left| T_{op} - T_{conf} \right| . dt}{\sum dt} \tag{IV.24}$$

$\overline{\Delta Tc}$ représente l'écart moyen entre la température opérative T_{op} de la cellule et la température de la zone de confort T_{conf} . Pour la présente étude, la température de la zone de confort correspond à la plage de température 20–26°C comme préconisée dans la norme 15251 [25] pour les bâtiments résidentiels.

La température opérative est calculée comme la moyenne de la température d'air de la cellule et de la température radiante moyenne. Cette dernière est égale à la température mesurée par le globe noir lorsque le vent est négligeable, comme c'est le cas pour l'intérieur de la cellule. L'analyse du confort thermique de la cellule test a été effectuée pour toutes les séries en conditions *Free-Floating*. On voit en Figure IV.4-11 les résultats de confort thermique pour le cas *baseline* hiver (séries 1b-3b), *baseline* été (11b-16b), *retrofit* hiver (6r-9r) et *retrofit* été (18r-23r). Comme précédemment, les résultats sont comparés d'une année à l'autre en cherchant des climats aussi similaires que possible puisque nous n'avons pas de cellule de référence à disposition pour comparer les résultats en parallèle. L'étude menée ne prend pas en compte l'occupation du local ainsi que la présence d'équipements électriques.

On a tracé sur le même graphe la température sol-air moyenne de la série, afin de pouvoir estimer l'apport ou la perte de chaleur dû aux effets combinés de la température extérieure et du rayonnement solaire.

À température sol-air équivalente, on observe une amélioration du confort suite à la pose du système d'isolation. En hiver, pour une température sol-air d'environ 8 °C, l'impact de

l'isolation sur la température est de 2,5°C. En général, les logements résidentiels disposent d'un système de chauffage permettant d'assurer le confort d'hiver et la température des pièces n'est jamais aussi loin du confort thermique. Cependant, cet écart de température à la zone de confort $\overline{\Delta Tc}$ est directement proportionnel au besoin en chauffage et donc à la consommation énergétique.

Lors du printemps (11b-12b et 18r-19r), pour des températures sol-air entre 18 et 23 °C, le confort thermique est assuré avec ou sans le système d'isolation intérieur.

Enfin, on observe une amélioration du confort d'été pour les températures sol-air supérieures à 25°C. L'impact de l'isolation intérieure sur la température est cette fois de 1°C.

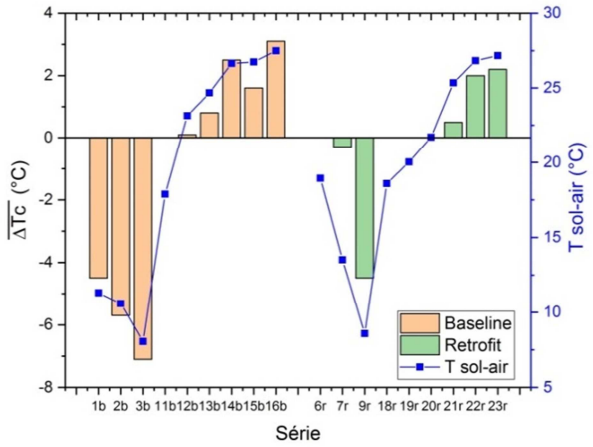


Figure IV.4-11: Écart de confort moyen entre la température opérative de la cellule et la température de la zone de confort (20-26°C). Les écarts négatifs correspondent aux périodes de chauffe et les écarts positifs aux périodes estivales.

L'ajout du système d'isolation intérieur permet à la paroi de mieux garder la chaleur l'hiver, mais aussi de maintenir la fraîcheur l'été. La forte résistance thermique de la paroi ($R > 3\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$) a une influence favorable de l'ordre de 1 °C en été et 2,5 °C en hiver.

Comme c'était le cas pour la mesure du facteur d'amortissement et du déphasage de la paroi, l'impact de l'isolation intérieure sur le confort reste relativement modéré pour les raisons suivantes :

- La cellule test ne comprend que deux parois verticales extérieures, les deux autres parois sont des cloisons intérieures avec d'autres pièces. L'effet des conditions climatiques extérieures sur la température intérieure de la cellule test est donc amoindri.
- La réhabilitation de la cellule test (mur *retrofit*) ne concerne que le mur test au sud de la cellule et non toutes les parois. Les autres parois sont déjà très bien isolées, on étudie uniquement l'influence d'un seul composant de la cellule : le mur test.
- Le mur test est déjà isolé par l'enduit extérieur isolant avant sa réhabilitation. Le confort thermique de la cellule est donc déjà optimisé et l'influence d'une couche supplémentaire d'isolation (ici intérieure) à un effet plus modéré que si la réhabilitation avait eu lieu sur un mur non isolé.

Bien qu'ayant un effet positif, le système d'isolation intérieur ne suffit pas à annihiler l'écart de température à la zone de confort. Cependant, elle rend plus efficaces les systèmes de rafraîchissement de l'air par la ventilation.

Une étude du confort d'été menée par le laboratoire fédéral d'essai des matériaux et de recherche (EMPA) [26] a montré que le couplage d'une forte résistance thermique des parois ($R > 3\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$) avec une surventilation nocturne du bâtiment permettait d'obtenir un excellent confort d'été en réduisant la température intérieure jusqu'à 4,5 °C. En complément, une forte inertie thermique du bâtiment et l'occultation des surfaces vitrées contribuent à un meilleur confort d'été.

IV.5 Conclusion

Le présent chapitre met en évidence les performances énergétiques du système d'isolation intérieur basé sur le *blanket* aérogel NGF, conçu par la société Trocellen. Ce système d'isolation intérieur a permis de réhabiliter le mur Sud de la cellule test présent sur le site de Mines ParisTech à Sophia-Antipolis. La cellule test a été instrumentée afin de suivre son comportement thermique (températures, flux thermique, station météorologique) et de mesurer certaines propriétés physiques de la paroi Sud en conditions climatiques réelles.
Initialement, ce mur était composé d'un enduit isolant extérieur et de béton. En juillet 2017, le mur sud a été réhabilité par l'ajout du système d'isolation intérieur composé principalement de 2,5 cm de super-isolant et d'un pare-vapeur.
Le coefficient de transmission thermique (*U-value*) est le paramètre principal caractérisant l'efficacité énergétique de la paroi. Il a été calculé à l'aide de méthodes en régime permanent et de méthodes dynamiques. Le *U-value* de la paroi après réhabilitation vaut $U_{retrofit} = 0{,}33\ \mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}$. Cette valeur de U pour une paroi verticale est acceptable dans le cas de rénovation de bâtiment, mais reste insuffisante pour les bâtiments neufs selon les exigences des RT 2012 et RT 2020. Afin de respecter ces deux dernières réglementations, il faudrait isoler les parois avec un *blanket* aérogel NGF d'épaisseur > 7,7 cm. Les méthodes actuelles de production ne permettent pas de produire un *blanket* aérogel monocouche avec une telle épaisseur, mais il reste cependant envisageable de proposer un système d'isolation ayant plusieurs couches de *blanket* NGF superposées (*e.g.* 3 couches de 2,5 cm). En mesurant le U-value de la paroi avant réhabilitation, $\boldsymbol{U_{baseline} = 0{,}67\ \mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}}$, et après réhabilitation $\boldsymbol{U_{retrofit} = 0{,}33\ \mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}}$ on a déterminé la résistance thermique *in situ* du système d'isolation intérieur : $\boldsymbol{R_{syst} = 1{,}5\ \mathrm{m^2 \cdot K \cdot W^{-1}}}$. Cette valeur correspond très bien à la résistance thermique du système calculée à partir des épaisseurs et des conductivités thermiques des couches mesurées en laboratoire avant sa mise en place. Les mesures *in situ* ont permis d'estimer la « vraie » valeur du *U-value* de la paroi et de la résistance thermique du système d'isolation et de valider ses performances énergétiques globales ainsi que sa technique de pose.

Une étude un peu plus approfondie a été menée sur les différentes méthodes d'estimation *in situ* du *U-value*. Les résultats ont été comparés pour les méthodes suivantes :

- Méthode *average* de la norme ISO 9869 (régime permanent)
- *R*égression linéaire avec prise en compte du rayonnement (régime permanent*)*
- Identification de paramètres d'un circuit RC représentant le mur. Le bilan des flux est décrit par un système d'équations différentielles ordinaires, résolu par le logiciel LORD (méthode dynamique)
- Identification de paramètres d'un circuit RC représentant le mur. Le bilan des flux est décrit par un système d'équations différentielles stochastiques, résolu par le logiciel CTSM-R (méthode dynamique)

Une première remarque concernant la détermination du *U-value* par les méthodes du régime permanent est que celles-ci nécessitent un long temps d'acquisition afin d'annuler l'effet capacitif du mur. Dans le cas du mur test, le temps d'acquisition nécessaire varie entre 1 et 3 mois, et peut être encore plus long pour des murs plus massifs. Dans le cadre de la thèse, cela n'a pas été une contrainte fondamentale, mais on peut supposer que dans le cadre d'un projet, la contrainte temporelle est omniprésente. La méthode *average* qui est la seule normalisée aujourd'hui, présente une précision de seulement 15 %. De plus, elle ne prend pas en compte l'effet du rayonnement solaire sur la paroi qui influe sur le *U-value* calculé. La méthode de la régression linéaire permet d'affiner la méthode *average*, en incluant un terme de rayonnement solaire dans l'équation du bilan de flux de la paroi. Les résultats obtenus sont ainsi plus précis et plus justes que ceux obtenus par la méthode *average* et donnent des informations sur le facteur de transmission solaire de la paroi. Les deux méthodes dynamiques donnent des résultats similaires sur le calcul du *U-value* et nécessitent seulement 10 jours de mesures. Les résultats sont bien plus précis (< 5 % d'erreurs) et répétables, et le faible temps d'acquisition permet d'obtenir à la fois de nombreuses valeurs de U et des données statistiques. On remarque que la méthode dynamique stochastique (CTSM-R) traite plus aisément les données bruitées que la méthode dynamique ordinaire (LORD). L'utilisation des méthodes dynamiques permet d'identifier la capacité thermique effective du mur, qui joue un rôle dans le confort thermique des bâtiments. Pour le mur test, on observe une légère amélioration de la capacité thermique effective avec la mise en place du système d'isolation (+ 400 kJ $\cdot$ K^{-1}) mais l'identification de ce paramètre est assez délicate et peu précise. Enfin, en fonction de la discrétisation du mur choisie et des variables mesurées expérimentalement, on peut identifier de nouveaux paramètres. Les méthodes dynamiques employées ont permis de déterminer le *g-value* du mur $\boldsymbol{g_{retrofit} = 0{,}014}$, le coefficient d'échange superficiel de la surface extérieure $h_e = 14{,}5$ W $\cdot$ m^{-2} $\cdot$ K^{-1} ou encore l'absorptance de la surface extérieure $\boldsymbol{\alpha = 0{,}23}$.

Pour finir, trois critères associés au confort thermique ont été mesurés expérimentalement : le facteur d'amortissement f et le déphasage ϕ du mur, et l'écart de température moyen à la zone de confort $\overline{\Delta Tc}$. Ces critères ont été mesurés en conditions *Free-Floating*, principalement en été, afin d'évaluer l'influence du système d'isolation sur le confort d'été. Les mesures expérimentales de f et ϕ ont donné des ordres de grandeur de ces paramètres ($\boldsymbol{f \sim 0{,}3 - 0{,}4}$ et $\boldsymbol{\phi \sim}$ **7h00 − 8h00**) mais n'ont pas permis de conclure nettement quant à l'effet du système d'isolation. La mesure expérimentale de l'écart au confort a montré que l'ajout du système d'isolation avait tendance à améliorer le confort de la cellule en abaissant la température de 1 °C en été, et en l'élevant de 2,5 °C en hiver. La conclusion de l'étude expérimentale sur le confort reste assez limitée, car la cellule test n'est pas un bâtiment commun (pas d'occupation, pas de ventilation, pas de fenêtre). Finalement, la difficulté à caractériser ces derniers critères de façon expérimentale nous a conduits à les étudier par le biais de simulations numériques, dont les résultats sont présentés dans le chapitre suivant.

Le chapitre suivant porte donc sur les simulations numériques effectuées au cours de la thèse, afin d'étudier plus en détails les performances du *blanket* aérogel en tant qu'isolant thermique de paroi de bâtiment.

REFERENCES

[1] 'https://insulation.trocellen.com/fr/'. [Online]. Available: https://insulation.trocellen.com/fr/. [Accessed: 23-May-2018].

[2] G. Krauss, 'Etude expérimentale des transferts de chaleur entre un bâtiment et son environnement: conception, réalisation, instrumentation d'une cellule test', Université Pierre et Marie Curie, 1985.

[3] Y. Berthou, 'Étude de parois de bâtiments passifs associant un Matériau à Changement de Phase (MCP) et une super isolation transparents', PhD Thesis, Paris ENMP, 2011.

[4] M. Ibrahim, 'Improving the buildings envelopes energy performance using aerogel-based insulating mineral rendering', Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2014.

[5] W. Köppen and R. Geiger, 'Handbuch der klimatologie', *Gebrüder Borntraeger Berl.*, 1936.

[6] R. Geiger, 'Klassifikation der klimate nach W. Köppen', *Landolt-Börnstein Zahlenwerte Funkt. Aus Phys. Chem. Astron. Geophys. Tech. Alte Ser. Vol*, vol. 3, 1954.

[7] K. A. Antonopoulos and E. Koronaki, 'Apparent and effective thermal capacitance of buildings', *Energy*, vol. 23, no. 3, pp. 183–192, Mar. 1998.

[8] G. Desogus, S. Mura, and R. Ricciu, 'Comparing different approaches to in situ measurement of building components thermal resistance', *Energy Build.*, vol. 43, no. 10, pp. 2613–2620, 2011.

[9] H. Madsen, *Time series analysis*. Chapman and Hall/CRC, 2007.

[10] A. Rabl, 'Parameter estimation in buildings: methods for dynamic analysis of measured energy use', *J. Sol. Energy Eng.*, vol. 110, no. 1, pp. 52–66, 1988.

[11] M. F. Fels and others, 'PRISM: an introduction', *Energy Build.*, vol. 9, no. 1–2, pp. 5–18, 1986.

[12] 'Thermal insulation — Building elements — In situ measurement of thermal resistance and thermal transmittance - BS ISO 9869-1:2014'.

[13] R. C. Sonderegger, 'Dynamic models of house heating based on equivalent thermal parameters', 1978.

[14] W. A. Shurcliff, 'Frequency Method of Analyzing a Building's Dynamic Thermal Performance, Cambridge, MA', 1985.

[15] K. Subbarao, 'Thermal parameters for single and multizone buildings and their determination from performance data. Golden, CO: Solar Energy Research Institute Report SERI', TR-253-2617, 1985.

[16] P. Bacot, 'Identification de modèles de comportement des systèmes thermiques', *Rev. Générale Therm.*, vol. 24, no. 277, pp. 15–21, 1985.

[17] J. Kreider, 'Neural networks applied to building energy studies.', in *1995 Workshop On Parameter Identification*, 1995, pp. 243–251.

[18] P. Bacher and H. Madsen, 'Identifying suitable models for the heat dynamics of buildings', *Energy Build.*, vol. 43, no. 7, pp. 1511–1522, 2011.

[19] O. Gutschker, 'Parameter identification with the software package LORD', *Build. Environ.*, vol. 43, no. 2, pp. 163–169, Feb. 2008.

[20] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery, *Numerical recipes in C*, vol. 2. Cambridge university press Cambridge, 1996.

[21] N. Metropolis and S. Ulam, 'The monte carlo method', *J. Am. Stat. Assoc.*, vol. 44, no. 247, pp. 335–341, 1949.

[22] O. Gutschker, H. Rogali, and A. Donath, 'Parameter identification to analyse heat insulation measurements', *Workshop Appl. Syst. Identif. Energy Sav. Build.*, p. 281.

[23] N. R. Kristensen and H. Madsen, 'Continuous Time Stochastic Modelling-CTSM 2.3 User Guide', *Tech. Univ. Den. Lyngby Den.*, 2003.

[24] H. Asan and Y. S. Sancaktar, 'Effects of Wall's thermophysical properties on time lag and decrement factor', *Energy Build.*, vol. 28, no. 2, pp. 159–166, Oct. 1998.

[25] C. E. de Normalisation, 'Critères d'ambiance intérieure pour la conception et évaluation de la performance énergétique des bâtiments couvrant la qualité de l'air intérieur, la thermique, l'éclairage et l'acoustique', *E51-762*, 2007.

[26] T. Frank, 'Protection thermique estivale des pièces sous les combles', EMPA Materials Science & Tchnology, 444 383f, Apr. 2008.

V. Simulations numériques à l'échelle du système et du bâtiment

Table des matières

Introduction....272

V.1.Modélisation numérique 1 D pour le calcul du déphasage, du facteur d'amortissement et de l'épaisseur économique....273

V.1.1. Description du modèle....273
V.1.2. Validité du modèle....275

V.1.2.a. Comparaison avec les données de la littérature....275
V.1.2.b. Comparaison avec le mur test....277

V.1.3. Résultats sur le déphasage et le facteur d'amortissement....279
V.1.4. Évaluation de la rentabilité de l'isolation....281

V.2.Étude hygrique avec WUFI....285

V.2.1. Description des cas d'étude....285
V.2.2. Description du modèle hygrothermique....286
V.2.3. Critères de performances hygrothermiques des parois....289

V.2.3.a. Teneur en eau totale dans la paroi utot....289
V.2.3.b. Teneur en eau dans les couches individuelles ui....290
V.2.3.c. Risque de condensation RC....290
V.2.3.d. Développement de moisissures IM....290
V.2.3.e. Critère ASHRAE 160P ASH....291
V.2.3.f. Résistance thermique ΔR....291

V.2.4. Résultats de simulation et discussion....292

V.2.4.a. Teneur en eau dans la paroi....292
V.2.4.b. Risque de condensation....293
V.2.4.c. Développement des moisissures....296
V.2.4.d. Critère ASHRAE....297
V.2.4.e. Résistance thermique....298

V.3.Etude énergétique globale avec Energy Plus....299

V.3.1. Description générale de la physique des modèles....299

V.3.1.a. Conduction thermique dans les parois....299
V.3.1.b. Bilan de surface extérieure....300

i. Rayonnement courtes longueurs d'ondes....300
ii. Rayonnement grandes longueurs d'ondes....301

iii. Convection externe 301
V.3.1.c. Bilan de surface intérieure 302
i. Flux radiatif net GLO 302
ii. Flux radiatif CLO 302
iii. Convection interne 303
V.3.1.d. Bilan thermique de l'air dans les zones 303
V.3.2. Description des cas d'études 303
V.3.2.a. Cas du bâtiment tertiaire 304
V.3.2.b. Cas de l'appartement 305
V.3.3. Résultats des simulations 306
V.3.3.a. Besoin net du bâtiment tertiaire 306
V.3.3.b. Besoin en énergie finale et besoin en énergie primaire de l'appartement 307
V.3.3.c. Confort d'été de l'appartement 312
V.4.Conclusion 314
RÉFÉRENCES 316

Introduction

Le chapitre présent traite des simulations numériques réalisées dans le cadre de la thèse. Ces simulations numériques sont effectuées à une échelle globale de bâtiment, et tente de mettre en avant l'impact du système d'isolation incluant le NGF sur le comportement hygrothermique du bâtiment. Les simulations prennent pour données d'entrées les résultats de caractérisation thermohygrique du *blanket* NGF du chapitre II, et les résultats expérimentaux de caractérisation thermique du système Trocellen du chapitre IV.

Dans un premier temps, un modèle thermique simplifié 1 D, réalisé sous Comsol Multiphysics 4.5, est utilisé pour calculer les facteurs d'amortissement et les déphasages des parois en fonction de la position de l'isolant et du mur structurant. Le modèle 1 D nous sert également pour la détermination des déperditions thermiques à travers l'enveloppe et à évaluer dans quelles mesures l'isolant *blanket* peut être rentable. Dans une deuxième partie, on s'intéresse à l'impact des systèmes isolants étudiés dans le projet (isolation intérieure, extérieure et toiture) sur l'équilibre hygrique du bâtiment et sur la conséquence pour les déperditions thermiques. L'étude numérique est réalisée avec Wufi Pro sur des modèles de paroi 1 D.

Une dernière partie est consacrée aux calculs de consommation énergétique de bâtiment intégrant le système d'isolation. On étudie le cas d'un bâtiment tertiaire et celui d'un appartement issu d'un logement collectif. L'approche est la plus complète possible avec la prise en compte de scénarii pour l'occupation, l'éclairage, les équipements électriques et la consommation d'eau. L'étude globale est réalisée avec Energy Plus pour des climats de référence typiques en Europe.

V.1 Modélisation numérique 1 D pour le calcul du déphasage, du facteur d'amortissement et de l'épaisseur économique

Dans cette partie, on se propose d'étudier l'influence théorique du système d'isolation NGF sur le déphasage ϕ et le facteur d'amortissement f du mur. Différentes configurations de mur sont étudiées, on s'intéressera à plusieurs matériaux structurants et à la position de l'isolant dans la paroi. Comme ϕ et f sont des paramètres propres au mur, les simulations seront effectuées sur des murs types, à l'échelle « système mur-multicouches». Contrairement au chapitre IV, ils seront calculés pour une température intérieure fixe de 23 °C. C'est cette définition que l'on rencontre le plus fréquemment dans la littérature pour la détermination de ϕ et f par méthodes numériques.

Dans la dernière partie, une étude sur la rentabilité de l'isolant NGF sera menée dans laquelle on déterminera l'économie financière et énergétique engendrée par cet isolant, ainsi que l'épaisseur optimale à appliquer.

V.1.1. Description du modèle

Pour l'étude, le transfert de chaleur dans le mur est supposé unidimensionnel. La Figure V.1-1 schématise la géométrie du problème. Dans le cas général, le mur est composé de plusieurs couches ayant chacune leurs propres propriétés thermophysiques. L'équation de transfert conductif du mur est la suivante :

$$\lambda \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = \rho c \frac{\partial T}{\partial t} \tag{V.1}$$

avec λ la conductivité thermique, ρ la densité, c la chaleur spécifique du matériau.

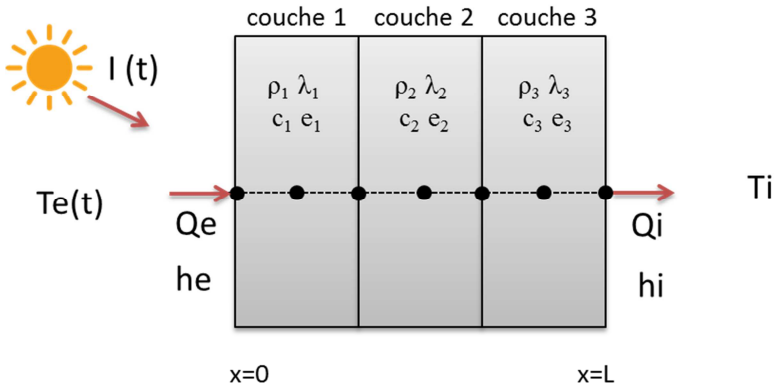


Figure V.1-1: Représentation schématique du transfert de chaleur dans le mur

La surface extérieure est soumise au rayonnement solaire, à la température extérieure et aux rayonnements infrarouges grandes longueurs d'onde. Pour simplifier le problème, ces trois derniers termes sont regroupés par le concept de la température sol-air T_{sa}.

On définit les équations de conditions limites de surface extérieure et de surface intérieure :

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial t} = h_e(T_{sa} - T_{se}) \quad (x = 0) \tag{V.2}$$

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial t} = h_i(T_i - T_{si}) \quad (x = L) \tag{V.3}$$

avec h_e et h_i les coefficients d'échange thermique de surface extérieure et de surface intérieure, respectivement, et T_{se} et T_{si} les températures de surface extérieure et intérieure, respectivement. Dans ce modèle, $h_e = 25$ $\mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}$ et $h_i = 7{,}7$ $\mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}$ comme recommandé par la RT 2012, et $T_i = 23$ °C.

On considère que la température sol-air varie de façon sinusoïdale sur une période de 24 heures. Puisque le déphasage et le facteur d'amortissement dépendent uniquement du mur et non des conditions climatiques, une équation générale de la température sol-air est [1] :

$$T_{sa}(t) = \frac{T_{Max} - T_{Min}}{2} \sin\left(\frac{2\pi t}{P} - \frac{\pi}{2}\right) + \frac{T_{Max} - T_{Min}}{2} + T_{Min} \tag{V.4}$$

avec P la période (24 heures), T_{Max} et T_{Min} les températures extérieures maximales et minimales. Pour le modèle, $T_{Max} = 50$ °C, et $T_{Min} = 25$ °C. La condition initiale du mur est la solution du problème en régime permanent.

Le problème est ainsi réduit à un transfert thermique conductif, avec une condition limite périodique pour la surface extérieure $T_{sa}(t)$ et une condition limite de convection libre pour la surface intérieure.

Le problème de transfert de chaleur est résolu par la méthode des éléments finis avec le logiciel COMSOL Multiphysics. La taille de maille est 1 cm et le pas de temps de calcul est 10 min, signifiant que l'erreur maximale possible sur le calcul du déphasage est de 10 minutes. La température sol-air est appliquée sur la surface extérieure jusqu'à l'obtention du régime permanent périodique. Les équations d'éléments finis sont résolues pour chaque nœud du système (Figure V.1-1) et le système complet est résolu. On obtient comme résultats le champ de température et de flux thermique dans le mur, puis on calcule le déphasage et le facteur d'amortissement.

Les simulations ont été faites sur quatre configurations de mur : sans isolation, avec isolation intérieure, avec isolation extérieure, avec isolation intérieure et extérieure. L'isolation considérée est le *blanket* aérogel NGF dont les propriétés thermophysiques ont été mesurées dans le chapitre de caractérisation II. Pour simplifier le problème, nous considérerons un mur uniquement constitué d'une couche structurante de 25 cm et de couches d'isolant NGF de 2 cm. Les parements intérieurs, extérieurs et les pare-vapeur ne sont pas modélisés, car leur effet sur le déphasage et le facteur d'amortissement est négligeable. Les couches structurantes investiguées pour les simulations sont les suivantes : pierre moellon (calcaire), brique pleine, brique creuse, parpaing. Nous avons choisi ces matériaux structurants, car ce sont les plus

représentés dans le parc immobilier français, en particulier pour les bâtiments construits avant 1974, pour lesquels une rénovation thermique est nécessaire. Ces bâtiments sont généralement mal isolés – voire pas du tout – et représentent aujourd'hui un tiers des logements en France. Les différentes configurations de mur sont montrées en Figure V.1-2, et les propriétés thermophysiques des matériaux constitutifs des murs structurants et du *blanket* aérogel NGF utilisées pour les simulations sont données dans le Tableau V.1-1.

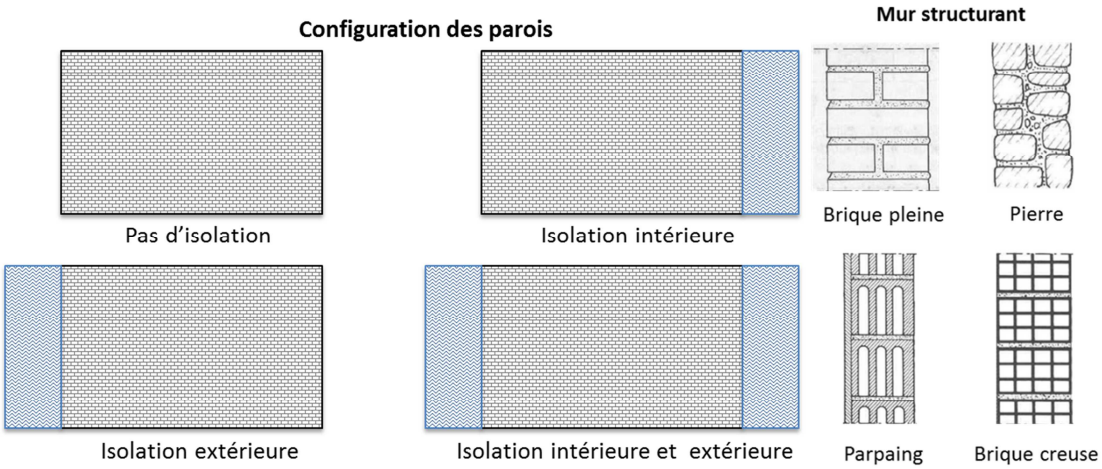


Figure V.1-2 : Configuration des parois et constitution murs structurants utilisés pour l'étude numérique. Isolant en bleu et mur structurant en gris.

	λ ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$)	ρ ($kg \cdot m^{-3}$)	c ($J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$)
Blanket aérogel NGF	0,016	180	800
Pierre moellon	2,91	2700	1000
Brique pleine	0,5	2000	900
Brique creuse	0,15	750	750
Parpaing	0,9	1200	1100

Tableau V.1-1 : Propriétés thermophysiques des matériaux utilisés pour les simulations numériques

V.1.2. Validité du modèle

Afin de valider le modèle numérique 1 D, une série de résultats a été comparée avec la littérature ainsi qu'avec les mesures réalisées sur la cellule test.

V.1.2.a Comparaison avec les données de la littérature

Dans leur article, Mackey et Wright [2] ont développé des expressions analytiques pour déterminer le facteur d'amortissement et le déphasage de murs composites. Ils ont étudié une trentaine de cas en jouant sur les propriétés physiques du mur (épaisseur, chaleur spécifique, densité, conductivité thermique) et le nombre de couches du mur. Ces résultats sont encore utilisés aujourd'hui comme références pour les simulations numériques en thermique du bâtiment. De nombreux auteurs ont utilisé les cas de Mackey pour évaluer leur propre méthode

de calculs, tels que Luo et al. [3] avec leur méthode des volumes finis et des facteurs de réponse, ou Yumrutaş et al. [4] avec leur méthode de transformation de Fourier complexe.

Nous avons donc testé notre modèle de simulation 1 D sur quelques cas de Mackey représentatifs pour valider notre modèle numérique. Les résultats de simulation sur les cas de Mackey sont présentés ci-dessous et comparés aux résultats obtenues par les auteurs mentionnés précédemment. Le détail des cas de Mackey utilisés est présenté dans le Tableau V.1-3.

	Mackey and Wright 1946		**Yumrutaş et al. 2007**		**Luo et al. 2007 volumes finis**		**Luo et al. 2007 facteurs de réponse**		**Etude présente Eléments finis**	
Cas de Mackey et Wright	ϕ *(h)*	f	ϕ *(h)*	f	ϕ *(h)*	f	ϕ *(h)*	f	ϕ *(h)*	f
1	4,5	0,161			4,4	0,159	4,5	0,161	4,2	0,182
26	15,8	0,015			15,8	0,015	15,8	0,015	14,8	0,030
27	24,0	0,002			23,8	0,002	23,9	0,002	23,8	0,009
28	8,5	0,066			8,4	0,066	8,5	0,066	9,2	0,074
29	12,6	0,025			12,6	0,025	12,6	0,025	11,3	0,031
31	3,3	0,214	4,1	0,250	3,4	0,215	3,4	0,215	3,0	0,250
32	12,2	0,022	12,8	0,030	12,3	0,022	12,2	0,022	12,2	0,024
33	4,6	0,161	5,3	0,190	4,6	0,161	4,5	0,161	4,1	0,189
34	3,6	0,186	4,3	0,210	3,6	0,186	3,6	0,186	3,3	0,210

Tableau V.1-2: Comparaison des résultats de facteur d'amortissement f et de déphasage ϕ avec les résultats de la littérature.

	Couche intérieure		Couche du milieu		Couche extérieure	
Cas de Mackey et Wright	L/λ ($m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)	$\rho C p \lambda$ ($J^2 \cdot m^{-4} \cdot K^{-2} s^{-1}$)	L/λ ($m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)	$\rho C p \lambda$ ($J^2 \cdot m^{-4} \cdot K^{-2} s^{-1}$)	L/λ ($m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)	$\rho C p \lambda$ ($J^2 \cdot m^{-4} \cdot K^{-2} s^{-1}$)
1 (2 couches)	1,1E-01	6,0E+05	2,2E-01	5,7E+05		
26 (2 couches)	2,1E-01	2,4E+06	8,8E-02	1,4E+07		
27 (2 couches)	2,1E-01	9,6E+06	8,8E-02	1,4E+07		
28 (2 couches)	2,1E-01	2,4E+06	8,8E-02	1,4E+05		
29 (2 couches)	6,4E-01	6,0E+05	4,4E-02	3,5E+06		
31 (3 couches)	1,1E-01	6,0E+05	1,1E-01	6,0E+05	4,4E-02	5,7E+05
32 (3 couches)	4,3E-01	6,0E+05	2,1E-01	6,0E+05	1,1E-01	5,7E+05
33 (3 couches)	1,1E-01	6,0E+05	1,1E-01	6,0E+05	1,1E-01	5,7E+05
34 (3 couches)	1,1E-01	6,0E+05	1,1E-01	6,0E+05	8,8E-02	1,4E+05

Tableau V.1-3 : Propriétés thermophysiques des murs pour les cas de Mackey

En termes de déphasage, nos résultats sont très proches de tous les autres auteurs avec une erreur maximale de 1,3 heure pour le cas 29. Pour le facteur d'amortissement, nos résultats sont très similaires à ceux de Yumrutaş et al., et ont une déviation maximale de 20 % avec les

résultats de Mackey et Wright, et Luo et al., à l'exception des cas 26/27. Ces deux cas représentent des murs ayant une très grande masse thermique. Nos résultats peuvent être améliorés en divisant les couches ayant une forte masse thermique en plusieurs sous-couches et en affinant le maillage. On peut conclure que nos résultats sont conformes à ceux de la littérature tant que les murs étudiés ont un produit $\rho C_p \lambda < 10^7$ $J^2 \cdot m^{-4} \cdot K^{-2} s^{-1}$, ce qui est vrai pour tous nos cas d'étude.

V.1.2.b Comparaison avec le mur test

Les résultats de simulation numérique 1 D ont également été comparés aux mesures expérimentales effectuées sur le mur test. Les variables de sorties comparées sont les températures de surface intérieure et extérieure, les températures d'interface entre le béton et l'enduit extérieur, et la densité de flux thermique de la surface intérieure. Pour la simulation, la condition limite de température sol-air est calculée à partir de l'équation suivante :

$$T_{sa}(t) = \widehat{T_e(t)} + \alpha \widehat{G_v(t)}/h_e \qquad \text{(V.5)}$$

$\widehat{T_e(t)}$ est la température extérieure mesurée expérimentalement, $\widehat{G_v(t)}$ le rayonnement global vertical sur la paroi mesuré expérimentalement. α est l'absorptance de la surface extérieure et h_e le coefficient de transfert thermique de la surface extérieure.

Pour la condition limite intérieure, deux cas de figure sont considérés selon si celle-ci est maintenue constante ou libre (*Free-Floating*). Pour le premier cas, la température intérieure prise en compte dans le modèle est fixe, égale à la température de consigne. Pour le cas *Free-Floating,* en supposant la température de la cellule homogène et la température de surface des murs identiques, l'équation de conservation de l'air dans la cellule s'écrit :

$$\frac{\partial(\rho_{air} c_{air} V T_i)}{\partial t} = S h_{ci}(T_{si} - T_i) \qquad \text{(V.6)}$$

avec $\rho_{air} c_{air}$ la capacité thermique de l'air, V le volume de la cellule, T_i la température intérieure, T_{si} la température de surface intérieure, S la surface des murs intérieurs en contact avec l'extérieur, et h_{ci} le coefficient de transfert convectif de la surface intérieure. En considérant que la capacité thermique de l'air est environ 1 000 fois plus faible que celle des matériaux solides, on peut alors négliger le terme de gauche dans l'équation.

On a alors $T_i \sim T_{si}$. Cette approximation correspond à une condition limite adiabatique que nous utiliserons pour le modèle numérique. Les figures ci-dessous montrent les résultats de simulations et les résultats de mesures expérimentales pour un cas en hiver avec température de consigne imposée du 1 au 7 février 2017, et un cas en été avec température intérieure libre du 24 au 30 juin 2017.

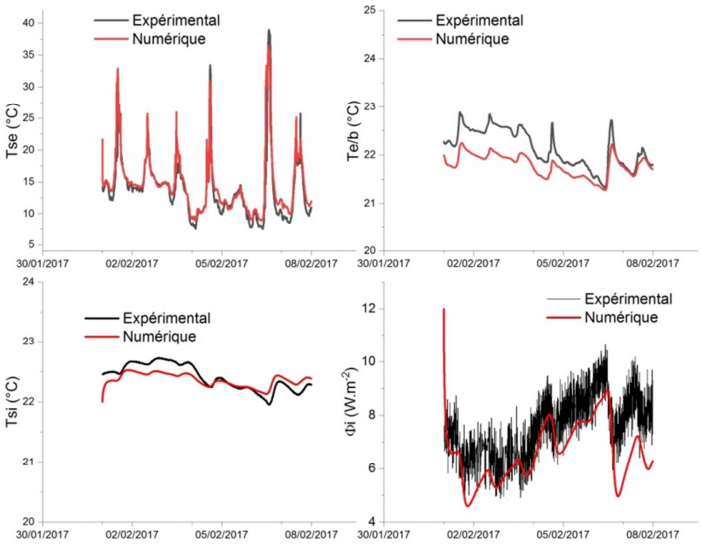


Figure V.1-3 : Comparaison des variables de sortie du modèle numérique 1 D avec les mesures expérimentales du mur test pour la période hivernale du 01/02/2017 au 07/02/2017. Tse : Température de surface extérieure, Te/b : Température entre l'enduit extérieur et le béton, Tsi : Température de surface intérieure, Φ_i Densité de flux thermique de la surface intérieure.

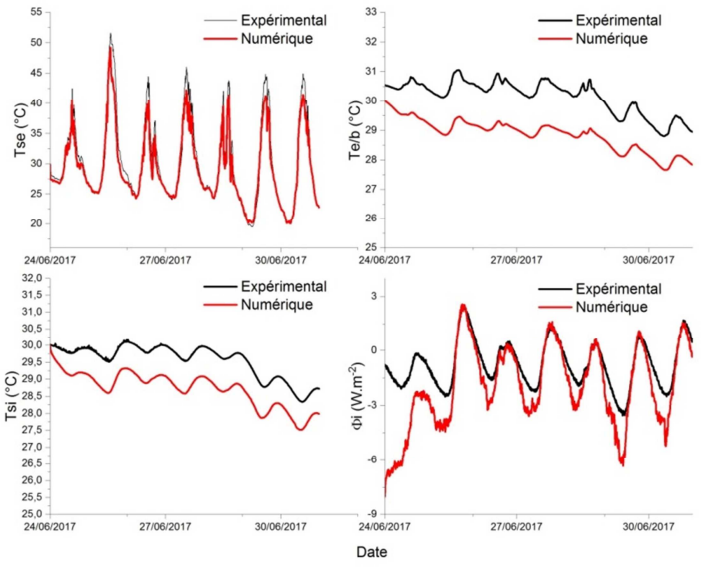


Figure V.1-4 : Comparaison des variables de sortie du modèle numérique 1 D avec les mesures expérimentales du mur test pour la période estivale du 24/06/2017 au 30/06/2017. Tse : Température de surface extérieure, Te/b : Température entre l'enduit extérieur et le béton, Tsi : Température de surface intérieure, Φ_i Densité de flux thermique de la surface intérieure.

Les profils de température et de flux thermique montrent des tendances très similaires entre le modèle numérique 1 D et les mesures expérimentales. Pour les températures, les erreurs maximales sont de 0,5 °C pour le cas hivernal et jusqu'à 1,5 °C pour le cas estival. Pour le flux thermique, l'erreur maximale est d'environ 2,5 $W \cdot m^{-2}$. Ces différences observées peuvent être expliquées par les multiples approximations faites dans le modèle numérique. Celui-ci considère un transfert unidimensionnel et néglige les pertes par pont thermique ou par le sol. Ces effets

sont limités en considérant l'utilisation de capteurs loin des effets de bord, mais restent tout de même difficiles à quantifier. Le modèle considère également des coefficients d'échange thermique des surfaces constants (convectif + radiatif), ce qui n'est pas très réaliste pour la surface extérieure (influence du vent, refroidissement radiatif nocturne). L'absence de pyrgéomètre sur le mur test ne nous permet pas de quantifier le rayonnement infrarouge entrant dans la surface, d'où l'approximation faite. Cependant, les coefficients d'échange thermique de la surface extérieure n'influent que très peu sur les résultats de déphasage et facteur d'amortissement, comme on peut le voir dans la référence [5].
On peut noter également quelques différences sur les températures de surfaces extérieures, lorsque le rayonnement solaire est important (aux alentours de midi). Il est difficile de savoir si l'augmentation de température observée est due à l'absorption du rayonnement solaire par le capteur ou par l'augmentation réelle de température de la surface du mur. Enfin, les écarts importants observés pour les densités de flux thermique lors des 2 premiers jours sont en partie dus aux conditions initiales.
Le modèle 1 D nous a permis de recalculer le facteur d'amortissement et le déphasage théorique du mur test de la cellule. Pour le cas *baseline*, on trouve f = 0,0164 et ϕ = 9 heures, et pour le cas *retrofit* f = 0,0156 et ϕ = 9,7 heures. Comme on pouvait s'y attendre, les valeurs calculées sont assez différentes de celles mesurées expérimentalement (f = 0,030-0,040 et ϕ = 7-9 h) en raison des nombreuses approximations du modèle 1 D et des aléas de mesures de la campagne expérimentale. Cependant, leur calcul numérique nous montre la faible influence du système d'isolation intérieur ajouté au mur expérimental sur f et ϕ et confirme l'hypothèse de la partie expérimentale sur la contradiction observée : l'effet du système d'isolation ajouté est très faible et il est noyé dans le bruit de mesure.

Les résultats obtenus à l'aide du modèle de simulation numérique présentent des erreurs maximales de 20 % avec les résultats de la littérature pour les calculs du déphasage et du facteur d'amortissement et de 1,5 °C avec les résultats expérimentaux de températures pour la cellule test. Pour les besoins de la thèse, ce premier modèle simpliste est suffisant pour les calculs de déphasage, facteur d'amortissement ou encore de déperditions thermiques. Un modèle plus complet sera proposé plus tard dans ce chapitre avec le logiciel spécialisé Energy Plus.

V.1.3. Résultats sur le déphasage et le facteur d'amortissement

Les variations de température de surface intérieure sont présentées en Figure V.1-5 pour les quatre types de murs structurants, et les quatre configurations d'isolant présentés en Figure V.1-2. Les propriétés thermophysiques du mur structurant et la position de l'isolant jouent un rôle essentiel sur les fluctuations de température de la surface intérieure. On observe aisément que l'ajout de l'isolant réduit fortement ces fluctuations. Avec l'isolation par l'extérieur, on obtient des températures légèrement plus lissées qu'en isolant par l'intérieur, et en isolant à la fois par l'intérieur et l'extérieur, on obtient une température de surface intérieure quasi

constante. En diminuant la conductivité thermique effective du mur, on réduit non seulement les fluctuations de température, mais on se rapproche également de la température de consigne intérieure (23 °C). On diminue également le flux thermique, et par extension la consommation d'énergie globale du bâtiment. La capacité thermique volumique ρC_p quant à elle, réduit les fluctuations sans forcément rapprocher la température de surface intérieure de la température de consigne.

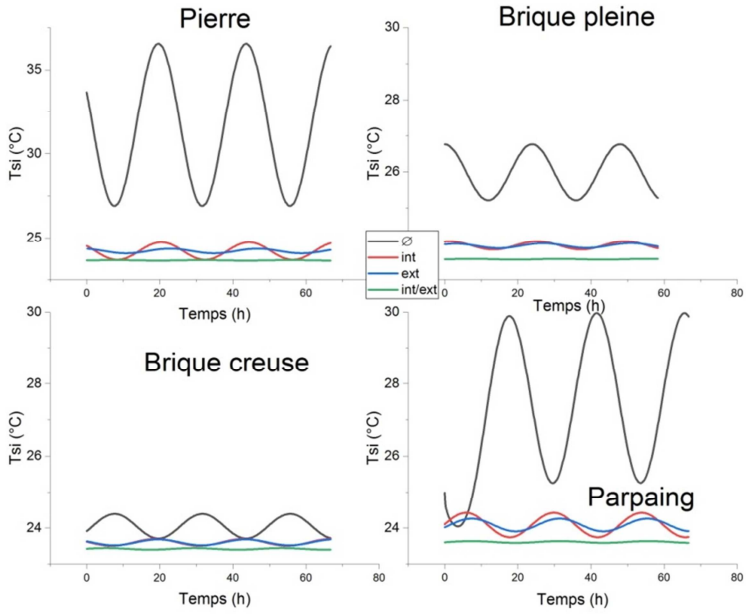


Figure V.1-5 : Variations de température de surface intérieure calculées pour une température sol-air variant entre 25 °C et 50 °C, pour les quatre types de murs structurants étudiés et les quatre configurations d'isolant étudiées.(Ø : cas baseline)

Les résultats de déphasage et de facteur d'amortissement sont présentés en Figure V.1-6. On voit sur les cas de murs non isolés que la conductivité thermique du mur structurant influence beaucoup le facteur d'amortissement, de $f = 0{,}41$ pour le mur en pierre ($\lambda = 2{,}9$ W · m^{-1} · K^{-1}) à $f = 0{,}03$ pour le mur en brique creuse ($\lambda = 0{,}15$ W · m^{-1} · K^{-1}). En isolant avec 2 cm de *blanket* NGF, on obtient des valeurs de f de l'ordre de 10^{-2}, avec des valeurs légèrement plus faibles pour le cas extérieur. Avec une isolation de même nature des deux côtés, f est inférieur à 10^{-2} pour toutes les configurations. Le déphasage dépend à la fois de la conductivité thermique et de la capacité thermique volumique du mur. Bien qu'ayant une masse thermique importante, la conductivité thermique élevée du mur en pierre lui confère un déphasage relativement faible par rapport aux murs en briques par exemple, qui eux, ont une faible conductivité thermique. L'isolation a assez peu d'effet sur le déphasage des murs. On observe un gain de 30 à 60 minutes avec l'isolation intérieure, 1 à 3 heures avec l'isolation extérieure, et jusqu'à 4 heures en combinant les deux.

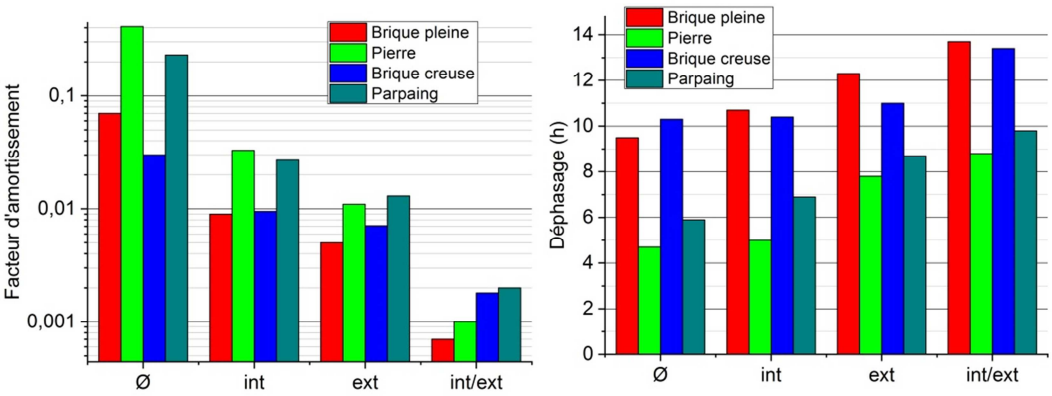


Figure V.1-6: Facteur d'amortissement (gauche) et déphasage (droite) calculés avec le modèle 1 D, pour les quatre types de murs structurants et les quatre configurations d'isolation.

L'approche numérique du calcul de f et ϕ permet de conclure à l'efficacité de l'isolant *blanket* NGF sur ces deux paramètres. La rénovation thermique avec deux centimètres d'isolant *blanket* NGF permettrait de diviser par 10 le facteur d'amortissement des parois avec une réduction plus marqué pour l'isolation extérieure. Une isolation intérieure/extérieure avec 2 cm de *blanket* NGF permettrait de diviser par environ 100 le facteur d'amortissement et de garantir une température de surface intérieure toujours constante.
Le déphasage est principalement gouverné par le mur structurant, bien que la position de l'isolant ait tout de même un rôle. Pour obtenir un déphasage intéressant, le mur doit non seulement avoir une forte capacité thermique volumique, mais également une faible conductivité thermique. Le rapport de ces deux derniers paramètres n'est autre que la diffusivité thermique.

Pour conclure, afin obtenir des valeurs adéquates de f et ϕ , il faut que les couches extérieures de la paroi aient une faible diffusivité thermique $\lambda/\rho c$ pour que le transfert thermique entre le climat extérieur et l'intérieur se fasse le plus lentement possible (inertie par transmission), et que les couches intérieures aient une forte effusivité thermique $\sqrt{\lambda \rho c}$ pour que le mur stocke au maximum la fraîcheur dans les éléments en contact avec l'intérieur du bâtiment (inertie par absorption). Ces dernières remarques expliquent pourquoi l'isolation extérieure avec un mur massif intérieur est la meilleure solution vis-à-vis de f et ϕ et donc du confort.

V.1.4. Évaluation de la rentabilité de l'isolation

Pour évaluer la rentabilité financière de l'isolation, on compare d'un côté le gain annuel d'énergie suite à l'isolation et de l'autre côté le coût de revient de l'isolation. Pour le calcul de rentabilité de l'isolant, on se contentera de calculer uniquement le coût d'exploitation du bâtiment lié aux déperditions thermiques à travers l'enveloppe, sans prendre en compte la ventilation puisque l'effet de l'isolation joue essentiellement sur ces déperditions-là. Les calculs ont été faits via le modèle numérique 1 D pour un gradient de température moyen de 10 °C et une période de chauffe de 242 jours (15 septembre – 15 mai). Le rendement de l'installation de

chauffage est de 90 %. Les simulations sont effectuées sur des cas de rénovation intérieure et extérieure de bâtiments non isolés avec les murs structurants définis dans le Tableau V.1-1. Le coût d'investissement d'une isolation comporte une partie fixe fonction des coûts de main d'œuvre et d'installations, et une partie variable avec l'épaisseur qui dépend du coût de fabrication du matériau [6].

$$C_i = (a + be) \tag{V.7}$$

où C_i est le prix de l'isolant au m², a et b sont des constantes dépendant de la nature propre du matériau isolant et de la main-d'œuvre, et e représente l'épaisseur de l'isolant. Pour les calculs, on prendra $a = 30\ € \cdot m^{-2}$ et $be = 20\ € \cdot m^{-2}$ par centimètre d'isolant. Dans les années à venir, le terme be devrait passer en dessous des $15\ € \cdot m^{-2}$ par centimètre d'isolant grâce à l'accroissement du volume global du marché des *blankets* aérogels. Le Tableau V.1-4 présente les temps de retour sur investissement pour les quatre parois considérées pour :

- Une isolation de 2,5 cm, comme le système isolant actuel, et conforme à la RT existant
- Une isolation de 6 cm, conforme à la RT 2012
- Une isolation de 8 cm, conforme à la RT 2020

	Pierre *(R=0.09 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)*		*Brique pleine* *(R=0.50 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)*		*Brique creuse* *(R=1,67 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)*		*Parpaing* *(R=0.28 $m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$)*	
e	**Int**	**Ext**	**Int**	**Ext**	**Int**	**Ext**	**Int**	**Ext**
2 cm	1,7 ans	1,5 ans	5 ans	3,8 ans	22 ans	15 ans	3,1 ans	2,8 ans
6 cm	2,9 ans	2,7 ans	7 ans	6 ans	24 ans	19,3 ans	4,7 ans	4,3 ans
8 cm	3,5 ans	3,3 ans	8,2 ans	7,4 ans	27 ans	22,3 ans	5,6 ans	5,1 ans

Tableau V.1-4: Temps de retour sur investissement de la rénovation de bâtiment non isolé par le *blanket* aérogel.

Les résultats de simulations nous indiquent que l'isolation par l'extérieur réduit les déperditions thermiques à travers l'enveloppe de façon plus optimale que l'isolation par l'intérieur, pour tous les murs étudiés. Avec 2 cm d'isolation, le gain est estimé à $9\ W \cdot m^{-2}$ pour le mur en pierre, $6\ W \cdot m^{-2}$ pour le mur en parpaings et un peu moins de $2\ W \cdot m^{-2}$ pour le mur en briques creuses. Cela se traduit par des temps de retour sur investissement plus courts de 10 à 30 %.
On voit également que la rénovation de murs très faiblement isolés est rentabilisée en très peu de temps à l'exception du mur en brique creuse qui dispose déjà d'une bonne résistance thermique. Pour les autres murs, 2 cm d'isolant NGF en intérieur sont rentabilisés en moins de 5 ans et permettent de respecter la RT existant. Pour respecter la RT 2020 et obtenir un bâtiment basse consommation, 8 cm d'isolation NGF sont nécessaires et le temps de retour sur investissement augmente jusqu'à 8 ans. À noter que les temps de retour sur investissement sont proportionnels au gradient de température, plus le climat est froid plus court sera ce temps.

Selon la période d'exploitation envisagée du bâtiment, on peut déterminer l'épaisseur économique optimale d'isolant qui minimise à la fois les coûts d'investissement et les coûts d'exploitation. La Figure V.1-7 montre le coût d'exploitation sur 10 ans de bâtiments en fonction de l'épaisseur d'isolant NGF appliquée en intérieur. L'épaisseur économique se déduit au croisement des courbes d'exploitation et de la courbe d'investissement. Pour le calcul du coût d'exploitation, le prix du kWh est de 0,13 $€ \cdot kWh^{-1}$. Pour les murs avec une faible conductivité thermique, une épaisseur d'isolant NGF de 4 cm permet de minimiser les coûts totaux. L'épaisseur économique tombe à 2 cm pour le cas du mur en briques creuses, car l'investissement d'un isolant plus épais ne serait pas le choix le plus favorable d'un point de vue économique (bien que préférable d'un point de vue écologique).

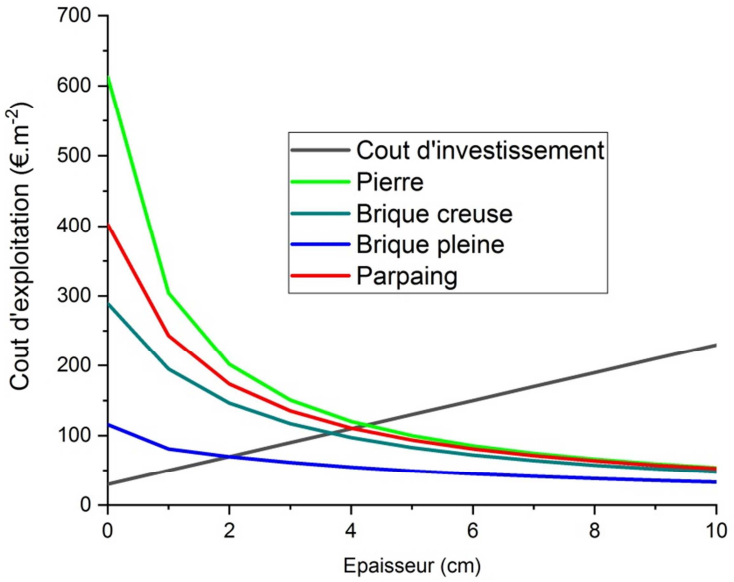


Figure V.1-7: Coût d'exploitation et coût d'investissement lié à l'application intérieure d'un isolant NGF, par m² de surface à isoler.

En considérant des périodes d'exploitation plus importantes, l'épaisseur économique augmente, jusqu'à 10 cm pour une période de 40 ans.

Le prix estimé du *blanket* aérogel reste néanmoins très élevé comparé à un isolant traditionnel (250 fois plus cher) et on obtiendrait un résultat plus économique si on augmentait simplement l'épaisseur des isolants conventionnels. Avec les réglementations actuelles et futures, un isolant classique de conductivité thermique 0,032 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ a besoin d'au moins 16 cm d'épaisseur contre seulement 8 cm pour le *blanket* aérogel. L'avantage du super-isolant est de préserver au maximum l'espace habitable lors de la rénovation d'un bâtiment par l'intérieur. Sur ce simple exemple, on voit que l'utilisation du *blanket* NGF permet de gagner 8 cm sur tout le périmètre isolé du bâtiment. Cela représente un gain de surface de 2,41 m² pour un bâtiment carré de 60 m² et 3,13 m² pour un bâtiment carré de 100 m². En intégrant la perte du coût foncier engendrée par la perte de surface de l'isolation, le *blanket* aérogel devient alors un sérieux concurrent. La Figure V.1-8 montre la différence de prix total entre le *blanket* aérogel et un

isolant conventionnel pour la rénovation d'un bâtiment par l'intérieur en fonction du prix de l'immobilier et de la surface au sol. L'isolant conventionnel choisit pour le calcul est une laine de verre de conductivité thermique 0,032 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, avec un prix de revient de 30 $€ \cdot m^{-2}$ pour la main-d'œuvre et 0,8 $€ \cdot m^{-2}$ par centimètre d'isolant.

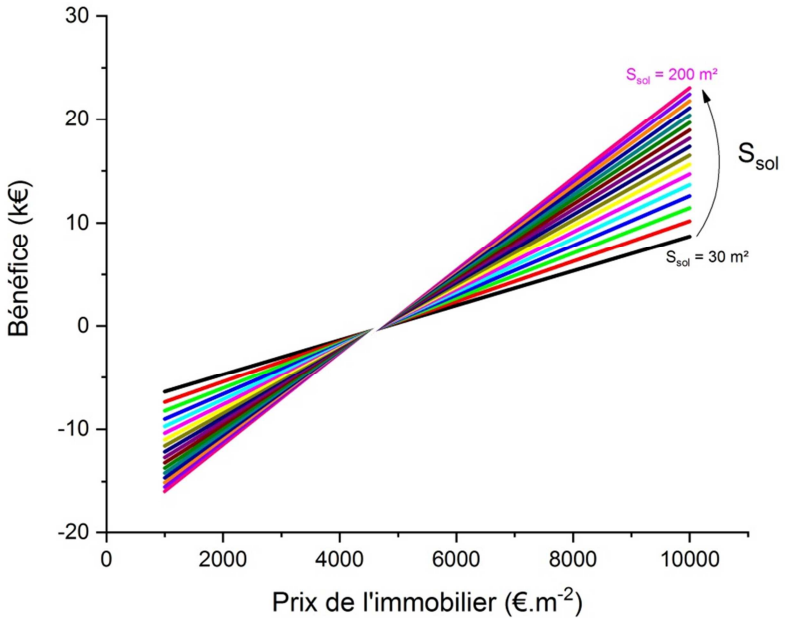


Figure V.1-8 : Bénéfice réalisé lors de la rénovation thermique en utilisant le *blanket* aérogel au lieu d'un isolant conventionnel. Le prix de revient intègre à la fois le prix de l'isolant et de sa pose et le coût lié à la perte de surface habitable. S_{sol} est la surface habitable avant rénovation.

À partir de 4 600 € le mètre carré, l'utilisation de *blanket* aérogel devient plus rentable qu'un isolant conventionnel pour une isolation intérieure avec un gain plus important pour les grands logements. Le *blanket* aérogel est rentable pour des villes ou le prix de l'immobilier est supérieur à 4 600 $€ \cdot m^{-2}$ comme c'est le cas pour Paris, Londres et Berne (~10 000 $€ \cdot m^{-2}$). Avec la baisse prévisionnelle du prix du *blanket* aérogel à 15 $€ \cdot m^{-2}$ par centimètre d'isolant, le marché peut s'ouvrir à des villes comme Nice, Vienne, Stockholm ou le prix de l'immobilier est supérieur à 4 000 $€ \cdot m^{-2}$.

V.2 Étude hygrique avec WUFI

L'objectif de cette partie est d'examiner les performances hygriques de parois isolées par les systèmes d'isolation proposés dans le projet HOMESKIN. Nous étudierons trois systèmes d'isolations : le système d'isolation intérieur développé par TROCELLEN[12], un système d'isolation extérieur développé par PAREX [13] et un système d'isolation de toitures-terrasses développé par FLAG[14]. Le système d'isolation intérieur est celui étudié dans le chapitre IV, il est composé principalement de l'isolant NGF, d'un pare-vapeur, d'une lame d'air et d'un parement intérieur. Le système d'isolation extérieur – appelé ETICS *pour External Thermal Insulation Composite System* – est un système multicouche composé d'un mortier de base sur lequel est collé l'isolant NGF ainsi que des toiles de fibres de verre maillées et une couche de finition. Le système d'isolation de toiture est composé d'un pare-vapeur, de l'isolant NGF, et d'une couche extérieure d'étanchéité. Le détail de la composition de ces deux derniers systèmes pourra être trouvé en Annexe 8.

La rénovation thermique de bâtiments existants est susceptible de modifier de façon notoire l'équilibre hygrique des parois. Les risques associés sont la fragilisation structurelle des matériaux de construction, la perte de leur performance thermique, le développement de moisissures et la perte de confort des occupants.

Ces risques sont étudiés avec le logiciel de simulation thermohydrique WUFI. Plusieurs critères d'évaluation sont mis en place comme la tendance au séchage, le développement des moisissures, les risques de condensation interne et la perte de performance thermique associée à une paroi humide.

V.2.1. Description des cas d'étude

On considère quatre types de murs pour l'étude :

- Une paroi légère, sans inertie thermique. L'isolant NGF est en sandwich entre un parement intérieur et un parement extérieur. On étudiera les cas de la présence ou non d'un pare-vapeur sur la face intérieure.
- Un mur massif isolé par le système d'isolation intérieur. On étudiera les cas avec et sans le pare-vapeur et la lame d'air.
- Un mur massif isolé par le système d'isolation extérieur ETICS. On étudiera l'influence de la perméabilité à la vapeur d'eau de l'enduit extérieur car celui-ci peut entraver la migration de vapeur d'eau de l'intérieur vers l'extérieur.
- Une toiture-terrasse isolée par le système d'isolation FLAG.

[12] https://insulation.trocellen.com

[13] https://www.parexlanko.com

[14] http://www.flag-on.com/

Tous les cas étudiés sont présentés dans le tableau ci-dessous :

Cas n°	*Configuration*	*Couche 1 extérieure*	*Couche 2*	*Couche 3*	*Couche 4*	*Couche 5*	*Couche 6*
1	Paroi légère	Aggloméré	NGF	Plâtre			
2		Aggloméré	NGF	Pare-vapeur	Plâtre		
3	Isolation intérieure (mur massif)	Enduit	Béton	Plâtre			
4		Enduit	Béton	NGF	Pare-vapeur	Lame d'air	Plâtre
5		Enduit	Béton	NGF	Plâtre		
6	Isolation extérieure (mur massif)	Enduit µ=30	Béton	Plâtre			
7		Enduit µ=30	NGF	Béton	Plâtre		
8		Enduit µ=360	Béton	Plâtre			
9		Enduit µ=360	NGF	Béton	Plâtre		
10	Toiture	Étanchéité	Béton				
11		Étanchéité	NGF	Pare-vapeur	Béton		

Tableau V.2-1: Configuration des murs simulés avec WUFI

Les murs massifs sont constitués de 24 cm de béton. Chaque configuration est comparée à un modèle de base avant rénovation : cas n° 3 pour l'isolation intérieure, cas n° 6 et n° 8 pour l'isolation extérieure et cas n° 10 pour la toiture. La configuration paroi légère ne possède pas de modèle de base. Les systèmes d'isolation sont composés de 2 cm d'isolant NGF pour l'isolation intérieure, et 3 cm d'isolant NGF pour les autres cas. Les pare-vapeur utilisés pour la simulation sont ceux de Trocellen et Flag, de résistance à la diffusion de vapeur d'eau µ ~ 10 000.

V.2.2. Description du modèle hygrothermique

Le logiciel WUFI Pro 6.1 est utilisé pour résoudre le transfert hygrothermique couplé unidimensionnel dans la paroi. Les équations de transport hygrothermique couplées de la paroi sont :

$$\frac{\partial H}{\partial T}\frac{\partial T}{\partial t} = \boldsymbol{\nabla}(\lambda_H^*(w)\boldsymbol{\nabla}T) + h_e\boldsymbol{\nabla}(\frac{\delta_{air}}{\mu(\varphi)}\boldsymbol{\nabla}(\varphi P_{sat})) \quad \text{(V.8)}$$

$$\frac{\partial w}{\partial \varphi}\frac{\partial \varphi}{\partial t} = \nabla(D_\varphi\nabla\varphi + \frac{\delta_{air}}{\mu(\varphi)}\boldsymbol{\nabla}(\varphi P_{sat})) \quad \text{(V.9)}$$

avec H l'enthalpie du matériau humide, T la température, $\lambda_H^*(w)$ la conductivité thermique effective du matériau humide, δ_{air} la perméabilité à la vapeur d'eau de l'air, $\mu(\varphi)$ le facteur de

résistance à la diffusion de vapeur d'eau, φ l'humidité relative, P_{sat} la pression partielle de vapeur saturante, w la teneur en eau et D_φ le coefficient de transport liquide.

Pour la résolution du système d'équations couplées, WUFI utilise la méthode des volumes finis pour la discrétisation spatiale des équations différentielles partielles, avec une formulation implicite pour la discrétisation temporelle. La formulation implicite mène à un système d'équations matriciel résolu par la méthode itérative ADI – *Alternating Direction Implicit* – [7], [8].

Les équations qui décrivent les conditions limites de la surface intérieure sont les suivantes :

$$q_i = h_i(T_{si} - T_i) \tag{V.10}$$

$$g_{v,i} = \beta_i(\varphi_{si} P_{sat}(T_{si}) - \varphi_i P_{sat}(T_i)) \tag{V.11}$$

L'équation (V.10) décrit les échanges thermiques convectifs et radiatifs de la surface intérieure. q_i est la densité de flux thermique sensible de la surface intérieure, T_{si} la température de surface intérieure, T_i la température intérieure et h_i le coefficient d'échange thermique de la surface intérieure incluant les effets de la convection et du rayonnement grandes longueurs d'onde. L'équation (V.11) décrit un transfert hygrique analogue à un transfert convectif. $g_{v,i}$ est la densité de flux de vapeur d'eau de la surface intérieure, β_i le coefficient de transfert de vapeur de la surface intérieure, φ_{si} l'humidité relative de la surface intérieure, φ_i l'humidité relative intérieure. Pour les simulations avec WUFI, nous prendrons $h_i = 8$ W · m^{-2} · K^{-1} et $\beta_i = 25.10^{-9}$ kg · m^{-2} · s^{-1} · Pa^{-1}.

Les conditions de température et d'humidité relative intérieures sont celles de la norme EN 15026 [9]. Les valeurs de température et d'humidité relative sont corrélées aux températures extérieures comme on peut le voir sur la Figure V.2-1.

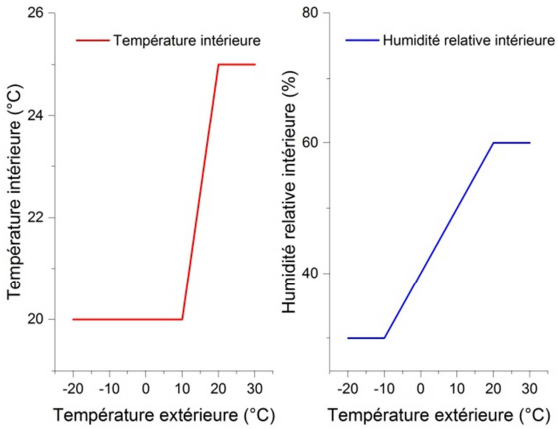


Figure V.2-1: Conditions hygrothermiques intérieures pour les simulations WUFI

Les équations qui décrivent les conditions limites extérieures sont les suivantes :

$$q_e = h_e(T_{se} - T_e) + \alpha_s G_v \tag{V.12}$$

$$g_{v,e} = \beta_e(\varphi_{se}P_{sat}(T_{se}) - \varphi_e P_{sat}(T_e)) \tag{V.13}$$

$$g_{l,e} = \alpha_R R \tag{V.14}$$

avec q_e la densité de flux thermique de la surface extérieure, h_e le coefficient de transfert thermique de la surface extérieure incluant la convection et le rayonnement grandes longueurs d'onde, T_{se} la température de surface extérieure, T_e la température extérieure, α_s l'absorptance solaire de la surface extérieure, G_v le rayonnement global vertical sur la paroi extérieure, $g_{v,e}$ la densité de flux de vapeur d'eau de la surface extérieure, β_e le coefficient de transfert de vapeur de la surface extérieure, φ_{se} l'humidité relative de la surface extérieure, φ_e l'humidité relative extérieure, $g_{l,e}$ la densité de flux liquide de la surface extérieure, α_R un facteur d'absorption de la pluie battante et R le débit massique d'eau de pluie sur la surface verticale. Pour les simulations avec WUFI, nous prendrons $h_e = 17\ \mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}$ pour les parois verticales et $h_e = 19\ \mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}$ pour les toitures, $\beta_e = 75.10^{-9}\ \mathrm{kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1} \cdot Pa^{-1}}$. Nous prendrons $\alpha_s = 0{,}2$ qui correspond à une surface assez réflective et qui sèche donc plus lentement. Pour l'absorption de l'eau de pluie, l'expérience montre que $\alpha_R = 0{,}7$ pour les parois verticales et $\alpha_R = 1$ pour les parois horizontales sont des valeurs appropriées.

Les simulations sont faites pour la ville de Grenoble, représentative d'un climat français semi-continental. Grenoble est un cas classique pour l'étude de transfert hygrothermique de paroi de bâtiment, car le climat y est très humide ($\varphi_e = 75$ % en moyenne) et la pluie est abondante. La validation hygrique d'une paroi sur ce climat est valable *a fortiori* pour la plupart des autres villes en France. Quelques données sur le climat de Grenoble peuvent être trouvées en Figure V.2-2.

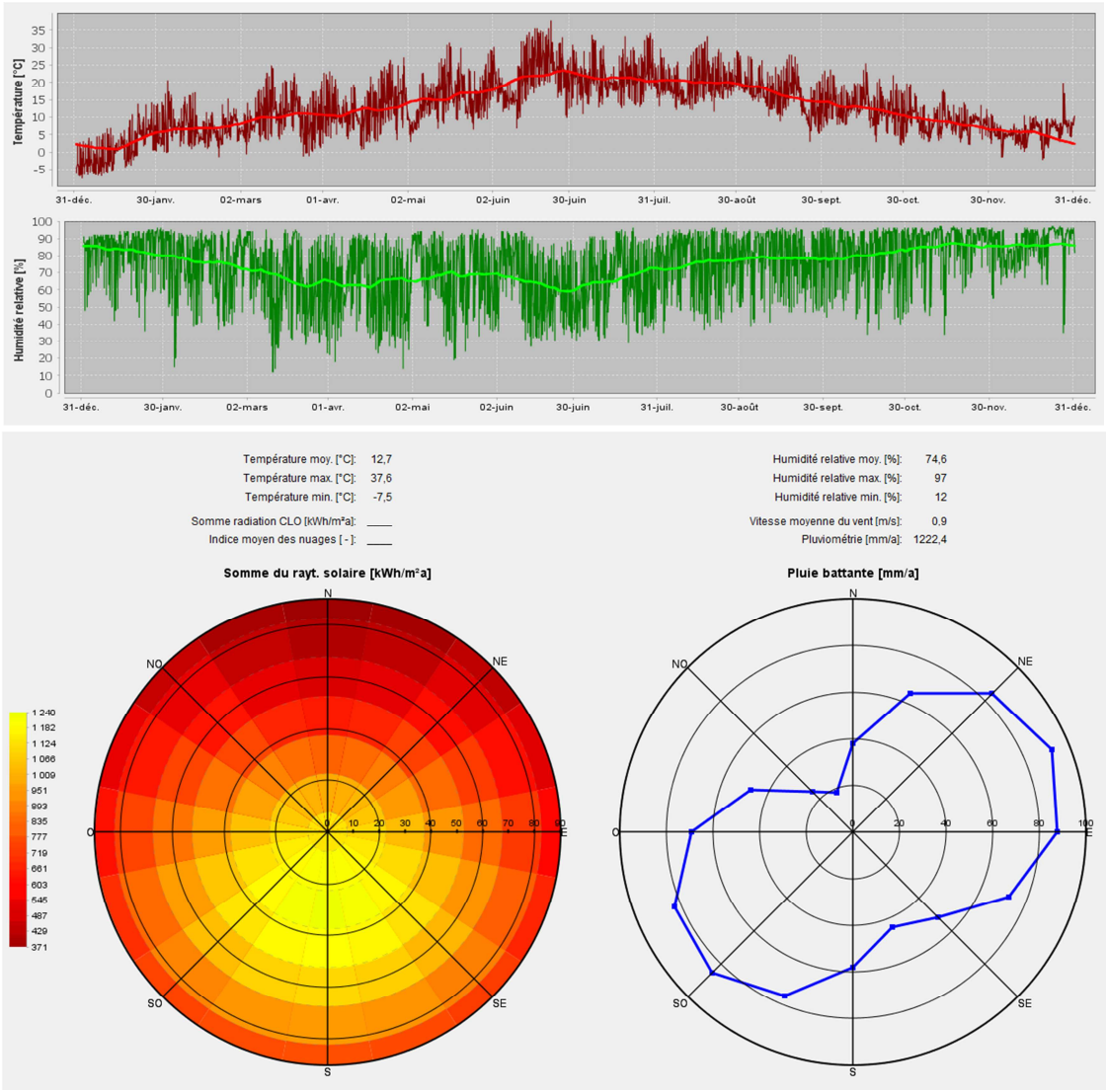


Figure V.2-2: Analyse du climat de Grenoble pour les simulations WUFI

Selon la norme ASHRAE 160P [10], les conditions initiales qui doivent être utilisées sont les suivantes :

- φ_0 = 90 % pour le béton
- φ_0 = 80 % pour tous les autres matériaux

Les simulations sont conduites pour des parois orientées Nord car c'est le cas le plus dimensionnant, sur une période de 10 années consécutives.

V.2.3. Critères de performances hygrothermiques des parois

V.2.3.a Teneur en eau totale dans la paroi u_{tot}

La mesure de la teneur en eau totale de la paroi est le critère principal pour évaluer son comportement hygrique. Ce critère indique si le mur a tendance à accumuler de l'humidité ou à sécher sur la période investiguée. Si la teneur en eau totale de la paroi s'accumule, alors ce

critère n'est pas validé, et on peut s'attendre à avoir des problèmes de condensation, moisissures, de corrosion, et de dégâts causés par le gel.

La tendance initiale de la teneur en eau totale dépend fortement des conditions initiales. C'est pourquoi les simulations sont conduites sur dix années consécutives afin que le mur atteigne un régime permanent, indépendant des conditions initiales. Dans le cas où le mur sèche, on évalue son taux de séchage sur dix ans :

$$s_{10} = u_{10}/u_0 \tag{V.15}$$

avec s_{10} le taux de séchage de la paroi sur dix ans, u_{10} la teneur en eau de la paroi au bout de dix ans et u_0 la teneur en eau initiale de la paroi.

V.2.3.b Teneur en eau dans les couches individuelles u_i

Si la tendance de la teneur en eau totale de la paroi est satisfaisante, il faut ensuite vérifier que l'eau ne s'accumule pas dans chacune des couches. Même si la teneur en eau totale a atteint un équilibre, ce n'est pas forcément le cas pour les couches individuelles dans lesquelles l'humidité peut se redistribuer. Une attention spéciale sera portée à l'accumulation d'humidité dans l'isolant thermique qui pourrait réduire son efficacité. Par ailleurs, certains matériaux de construction comme le bois ou les enduits extérieurs ne doivent pas avoir une teneur en eau dépassant une certaine limite pour éviter tout problème de pourrissement ou de dégâts par le gel (voir les limites autorisées au cas par cas par les fabricants).

V.2.3.c Risque de condensation *RC*

Le risque de condensation est évalué en observant l'humidité relative dans la paroi et sur la surface intérieure. Si l'humidité relative dépasse 100 %, alors il y a condensation de la vapeur d'eau. On notera alors le temps pendant lequel il y a condensation dans la paroi comme critère principal. Trois cas sont distingués :

- L'humidité relative n'atteint jamais 100 %, il n'y a jamais condensation dans la paroi, c'est le cas optimal.
- L'humidité relative atteint 100 % au maximum pendant quelques mois, mais l'eau finit par s'évaporer. Dans ce cas, il faut s'assurer que la quantité maximale de condensats soit inférieure à 200 $g \cdot m^{-2}$.
- L'humidité relative atteint 100 % et la paroi ne sèche pas.

V.2.3.d Développement de moisissures *IM*

Dans les parois, la surface intérieure et les interfaces entre les couches sont susceptibles de développer des moisissures en fonction des conditions hygrothermiques. Au-delà de l'aspect esthétique et sanitaire, les substances produites et émises par les moisissures peuvent menacer la santé des occupants. Pour analyser le risque de développement de moisissures, WUFI compare les conditions hygrothermiques des surfaces (Isopleths) avec les conditions nécessaires

au développement de la moisissure. Ces conditions sont étroitement liées à la température, à l'humidité relative et au substrat. WUFI simule la teneur en eau des spores de moisissures et la compare à la teneur en eau critique qui permet aux spores de germer. Une fois la germination commencée, le modèle permet d'estimer la propagation de la moisissure. Le critère choisi est l'indice de moisissure (IM) qui comporte sept niveaux :

Indice de moisissure	Description
0	Pas de développement de moisissure
1	Quelques développements de moisissure visibles au microscope
2	Développements de moisissure modérés, visible au microscope, Surface recouverte > 10 %
3	Quelques développements de moisissure visible à l'œil nu,
4	Surface recouverte visible à l'œil nu > 10 %
5	Surface recouverte > 50 %
6	Surface recouverte = 100 %

Tableau V.2-2: Indice de moisissure et signification

V.2.3.e **Critère ASHRAE 160P *ASH***

En 2006, l'ASHRAE a publié l'ASHRAE 160P [10], une norme sur les critères de dimensionnement des parois de bâtiment vis-à-vis de l'humidité. La norme se concentre essentiellement sur le développement de moisissures, puisque dans la plupart des cas, c'est le critère le plus sévère de tous. La paroi étudiée est correctement dimensionnée vis-à-vis de l'humidité pour le climat simulé si les critères suivants sont respectés :

- $\overline{HR_{30J}} < 80\ \%$
- $\overline{HR_{7J}} < 98\ \%$
- $\overline{HR_{1J}} < 100\ \%$

où $\overline{HR_{30J}}$, $\overline{HR_{7J}}$, $\overline{HR_{1J}}$ sont respectivement, les moyennes mobiles d'humidité relative de la surface concernée effectuée sur 30 jours, 7 jours et 1 jour. Ces critères sont valables pour des températures entre 5 °C et 40 °C, pour des surfaces qui ne sont pas en contact avec l'extérieur. On appellera ASH le pourcentage de temps pendant lequel au moins un des critères ci-dessus n'est pas respecté.

Si jamais la moisissure n'est pas concernée par le cas d'étude, *e.g.* de très faibles températures ou matériau non sujet à la moisissure, alors d'autres critères doivent être pris en compte.

V.2.3.f **Résistance thermique ΔR**

Ce dernier critère évalue la perte relative de performance thermique de la paroi associée à l'environnement humide. On détermine avec WUFI la résistance thermique moyenne de la paroi sur la période de simulation et on la compare avec la résistance thermique de la paroi à sec. Le critère de performance thermique est :

$$\Delta R = \frac{R_{moy} - R_{sec}}{R_{\text{sec}}} \tag{V.16}$$

avec ΔR la perte relative moyenne de résistance thermique due à l'humidité relative, R_{moy} la résistance thermique moyenne de la paroi sur la période de simulation et R_{sec} la résistance thermique de la paroi en conditions sèches.

V.2.4. Résultats de simulation et discussion

V.2.4.a Teneur en eau dans la paroi

La Figure V.2-3 montre l'évolution de la teneur en eau totale dans les parois. Pour tous les cas de réhabilitation, la teneur en eau totale diminue au cours du temps, signifiant que les parois arrivent à sécher. La réhabilitation par l'extérieur favorise le séchage du mur (3 fois plus rapide) tandis que la réhabilitation par l'intérieur le ralentit. On observe peu de différence sur la tendance au séchage entre les cas 4 et 5 (sans et avec pare-vapeur). Pour la toiture, la réhabilitation montre un séchage plus rapide qu'en l'absence d'isolation, bien qu'ayant une teneur en eau initiale plus importante. Enfin, on note que la présence du pare-vapeur pour la paroi légère (Cas 2) réduit la teneur en eau de la paroi pendant la saison humide.

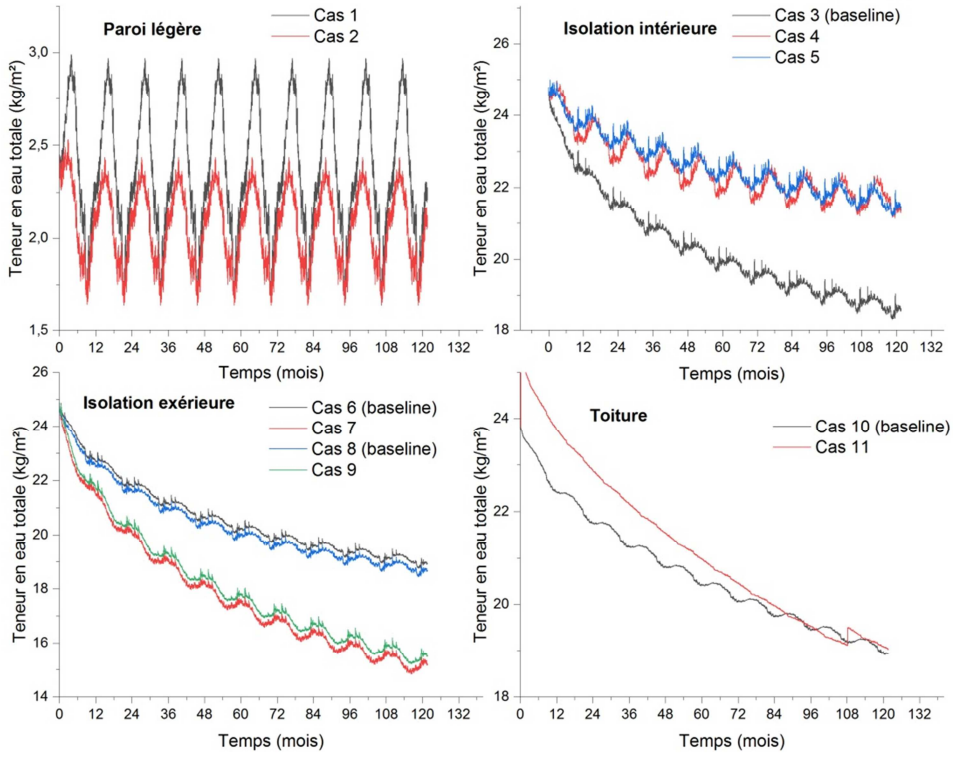


Figure V.2-3 : Teneur en eau totale dans les parois (Simulations WUFI pour le climat de Grenoble)

Le Tableau V.2-3 montre les taux de séchage au bout de 10 ans. Toutes les parois montrent une tendance au séchage. Le cas de l'isolation par l'extérieur montre le meilleur taux de séchage. Lorsque l'enduit extérieur dispose d'une plus faible perméabilité à la vapeur d'eau, le séchage est encore accéléré.

Cas n°	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
s_{10}	0,7 %	3,7 %	23 %	10,8 %	12,3 %	22 %	37 %	23 %	35,5 %	21 %	20,8 %

Tableau V.2-3: Taux de séchage des parois au bout de dix ans de simulation

L'étude de la teneur en eau pour chaque couche individuelle des parois a montré que chacune d'entre elles séchait lors des dix ans de simulation, à l'exception de la toiture. Dans ce cas, l'eau s'accumule dans l'isolant.

V.2.4.b Risque de condensation

Il y a condensation dans la paroi, lorsque localement, l'humidité relative atteint 100 %. Dans un premier temps, on identifie les interfaces à risque à l'aide des variogrammes d'humidité relative et de teneur en eau. Les variogrammes indiquent l'intervalle d'humidité relative (en vert) et de teneur en eau (en bleu) sur l'ensemble de la simulation et leur moyenne. Pour la paroi légère, la condensation est susceptible d'apparaître entre l'isolant et le parement extérieur (panneau le plus froid). On voit sur le variogramme de la Figure V.2-4 : cas 1, que l'humidité relative atteint 95 % à l'interface entre l'isolant et le parement extérieur avec une moyenne de 80 %, ce qu'il est préférable d'éviter. En ajoutant le pare-vapeur, l'humidité relative maximale descend à 80 % avec une moyenne de 70 %. On observe cette fois-ci une humidité relative maximale de 91 % entre l'isolant et le pare-vapeur, mais avec une humidité relative moyenne acceptable de l'ordre de 45 %.

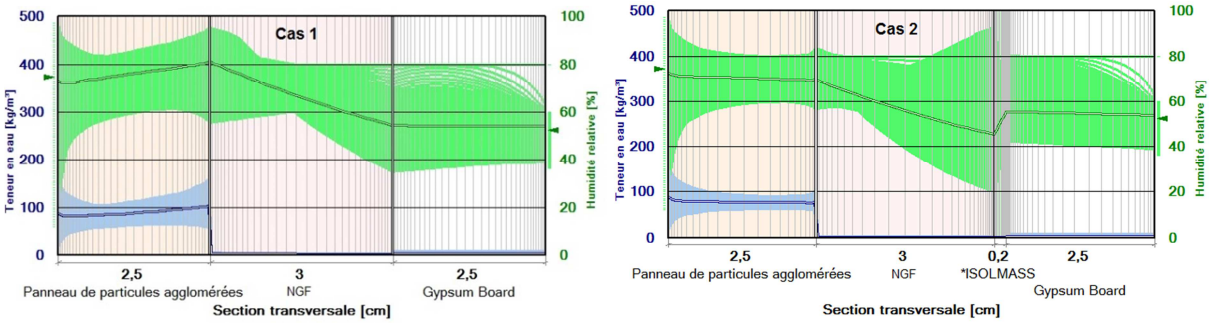


Figure V.2-4: Profil d'humidité relative et de teneur en eau pour la paroi légère. (gauche) Cas 1 : Isolation seule, (droite) Cas 2 : Isolation et pare-vapeur.

Pour le cas du mur massif avec isolation intérieure, la condensation est susceptible d'apparaître entre le béton et l'isolant NGF (Figure V.2-5). Sans pare-vapeur, l'humidité relative maximale est de 95 % avec une moyenne de 82 %. En ajoutant le pare-vapeur, on diminue ce risque, avec cette fois-ci une humidité relative maximale de 89 %. L'interface entre l'isolant et le pare-vapeur voit également son humidité relative monter à 91 %, mais seulement pendant un très court laps de temps. L'humidité relative moyenne est à cette interface est seulement de 60 %.

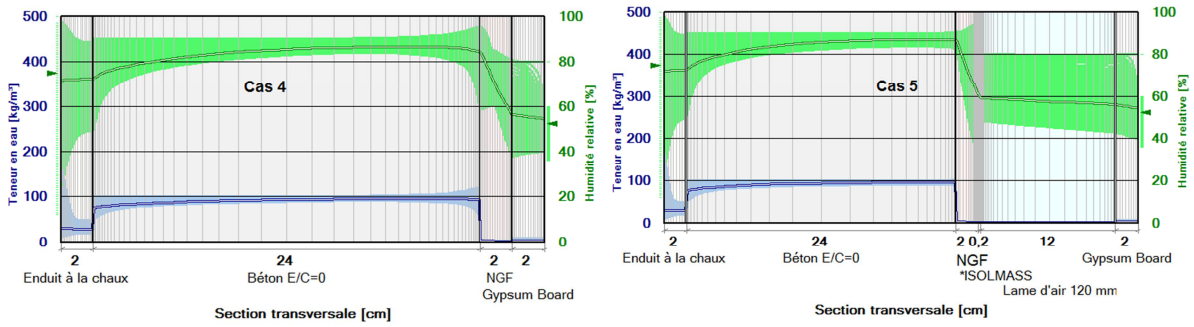


Figure V.2-5 : Profil d'humidité relative et de teneur en eau pour le mur massif isolé par l'intérieur. (gauche) Cas 4 : Isolation seule, (droite) Cas 5 : Isolation, pare-vapeur et lame d'air (Système Trocellen).

Dans le cas du mur massif avec isolation extérieure, les risques de condensation apparaissent entre l'enduit extérieur et le béton. Ce dernier résulte de la diffusion d'eau en excès contenue dans le mur au moment de la pose du système. La perméabilité de l'enduit extérieur joue un rôle dans l'accumulation d'humidité à cette interface, c'est pourquoi deux cas de figure sont testés. On voit sur le variogramme de la Figure V.2-6 que l'humidité relative maximale atteint 91 % pour le cas de l'enduit extérieur à forte perméabilité ($\mu = 30$). Celle-ci atteint 96 % dans le cas de l'enduit à faible perméabilité ($\mu = 360$).

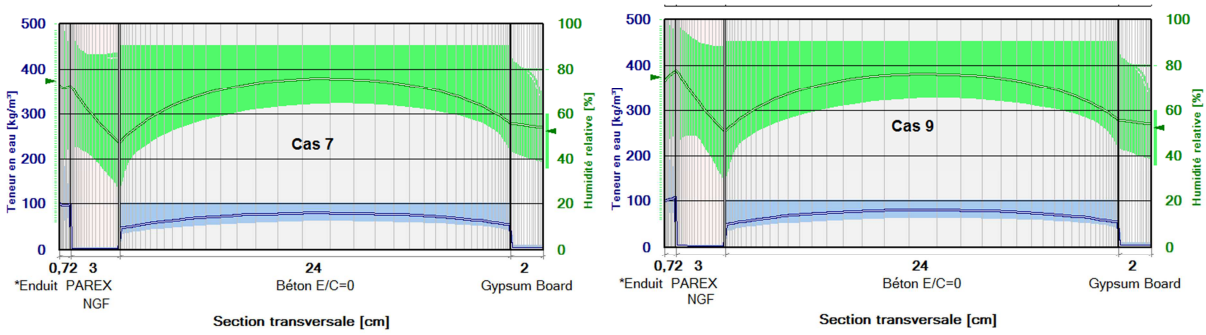


Figure V.2-6 : Profil d'humidité relative et de teneur en eau pour le mur massif isolé par l'extérieur (système ETICS de Parex). (gauche) Cas 7 : Enduit extérieur perméable, (droite) Cas 9 : Enduit extérieur peu perméable

Dans le cas de la toiture, les risques les plus importants sont dus à la diffusion de vapeur de l'eau en excès contenue dans le béton pendant la période de chauffe. La vapeur risque de s'accumuler sous la couche d'étanchéités et de dégrader l'isolant. C'est ce que l'on observe sur le variogramme d'humidité relative avec le système FLAG pour l'isolation de toiture. Au cours des années, l'humidité relative s'accumule dans l'isolant et n'arrive pas à en sortir. On atteint alors 100 % d'humidité relative dans l'isolant. Pour résoudre ce problème, on peut utiliser une étanchéité extérieure plus perméable à la vapeur d'eau pour laisser l'isolant respirer. En diminuant la valeur du s_d de la couche d'étanchéité à 0,1 m, on évite la condensation.

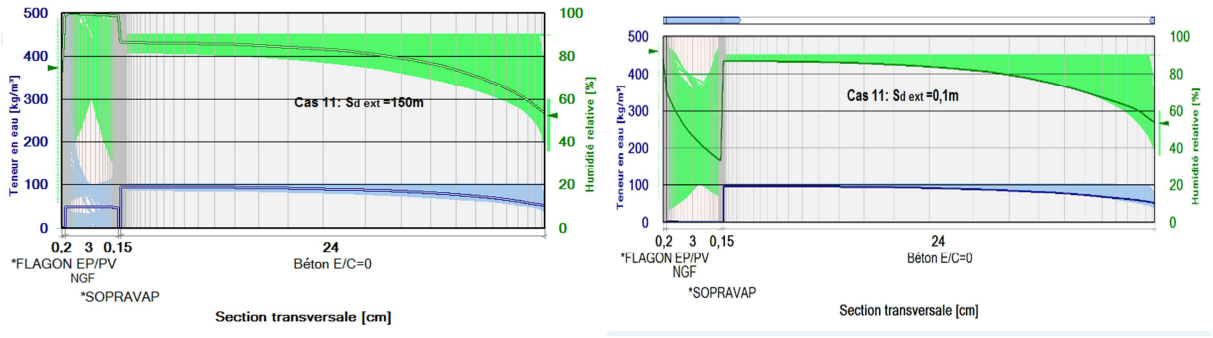


Figure V.2-7 : Profil d'humidité relative et de teneur en eau pour une toiture-terrasse isolée par l'extérieur. (gauche) Cas 11 : système FLAG avec s_d = 150 m pour la couche d'étanchéité, (droite) Cas 11 : système FLAG avec s_d = 0,1 m pour la couche d'étanchéité.

La Figure V.2-8 montre l'humidité relative pour toutes les interfaces à risque identifiées précédemment. Pour les cas 1 à 10, l'humidité relative n'atteint pas 100 %, il n'y a donc jamais condensation. La pose du système d'isolation pour ces cas modifie l'équilibre hygrique de la paroi sans conséquences de condensation interne ou de surface. Ce n'est en revanche pas le cas pour la toiture isolée par le système FLAG. L'humidité s'accumule aux interfaces des isolants, et l'humidité relative reste à 100 % pendant toute la durée de la simulation. Il convient alors de modifier le système, ou de s'assurer que la paroi soit la plus sèche possible lors de la mise en place du système et qu'aucune infiltration d'eau ne puisse atteindre l'isolant.

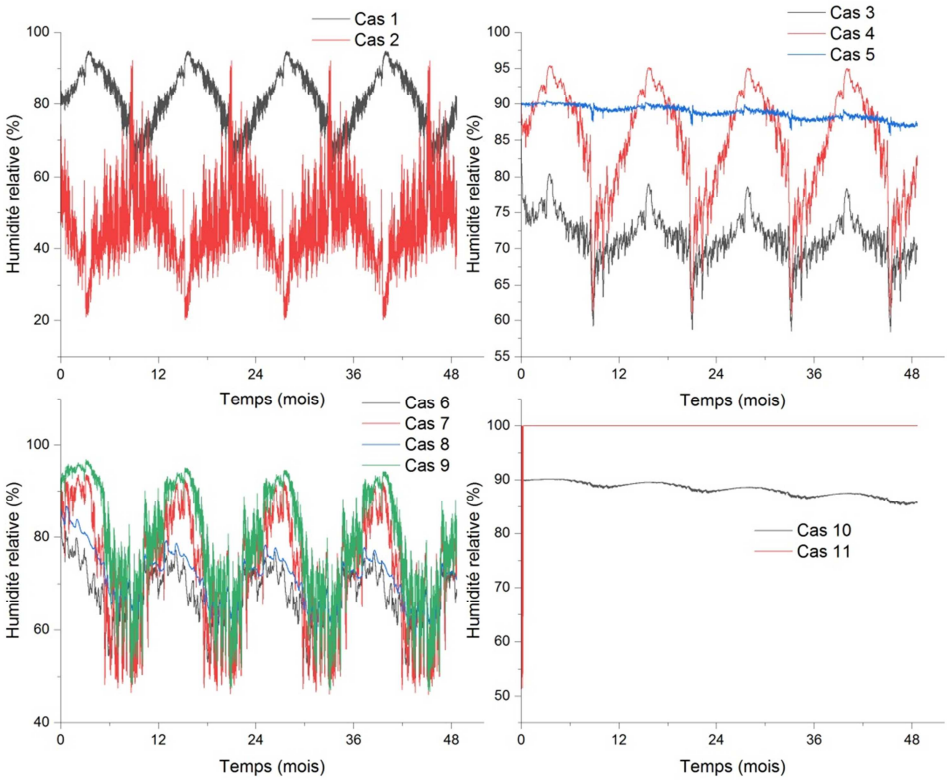


Figure V.2-8 : Humidité relative des interfaces à risques pour chaque cas de simulation.

V.2.4.c Développement des moisissures

On étudie le développement des moisissures sur toutes les interfaces pour chacun des cas. Le développement des moisissures est quantifié à l'aide de l'indice de moisissure entre 0 et 6. La Figure V.2-9 et la Figure V.2-10 montrent l'indice de moisissure pour les interfaces à risque. Les interfaces non représentées ont un indice de moisissure égal à 0 pour toute la durée de la simulation.

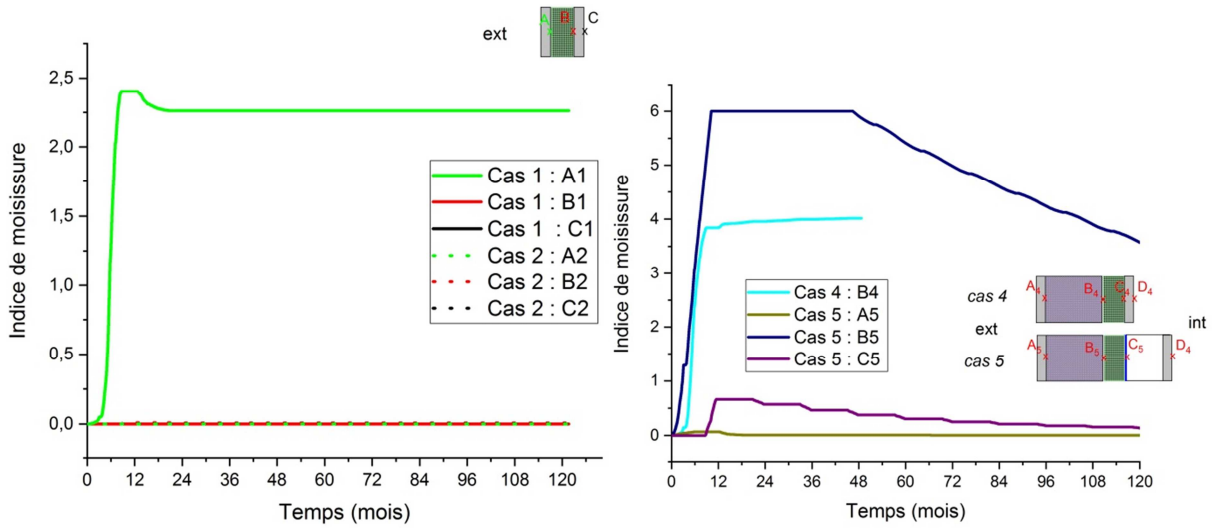


Figure V.2-9 : Indice de moisissure aux interfaces de parois étudiées, (gauche) paroi légère, (droite) isolation par l'intérieur.

Pour la paroi légère, le cas 2 est optimal car son indice de moisissure est toujours nul. Le cas 1 présente un léger développement de moisissure à l'échelle microscopique. Les deux cas sont acceptables.

Pour le mur massif avec isolation intérieure, il y a un gros risque développement de moisissure à l'interface béton-isolant, en particulier pour le cas du système de Trocellen où $IM = 6$. Cependant, à partir de 48 mois, le séchage de la paroi permet de diminuer ce risque. Ce risque élevé de développement des moisissures est dû à la lame d'air peu réaliste de la simulation. Le logiciel WUFI considère la lame d'air comme stagnante, il n'est pas possible de simuler une lame d'air ventilée comme ce devrait être le cas pour notre système. Avec une ventilation de la lame d'air adaptée, il n'y aurait pas accumulation d'humidité à l'interface béton-isolant et donc pas de développement de moisissure.

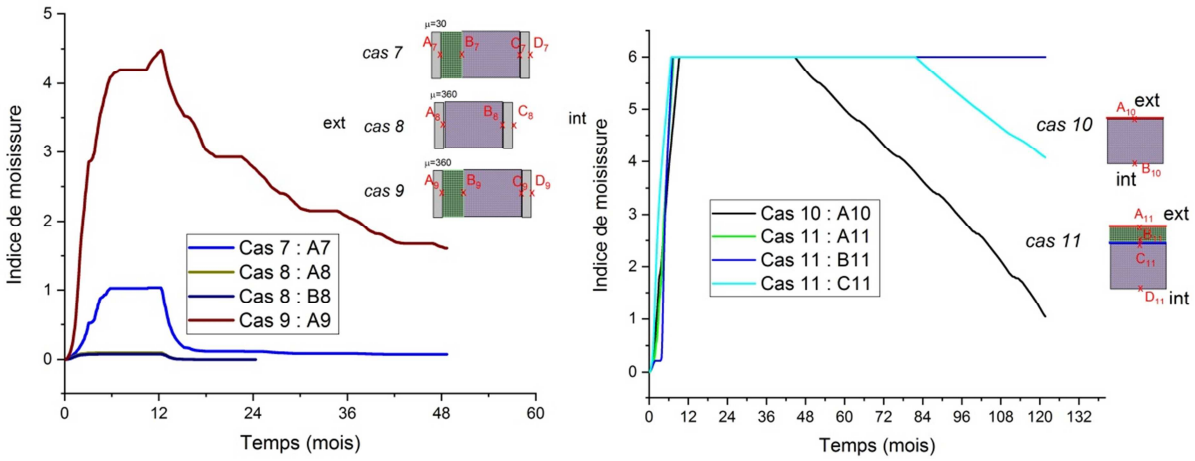


Figure V.2-10 : Indice de moisissure aux interfaces de parois étudiées, (gauche) mur massif avec isolation par l'extérieur, (droite) isolation toiture-terrasse.

Pour le cas du mur massif avec isolation par l'extérieur, le risque principal se situe au point A entre l'enduit extérieur et l'isolant. Pour un enduit extérieur à forte perméance ($\mu = 30$), l'indice de moisissure reste relativement faible ($IM = 1$) et redescend au bout d'un mois. Pour un enduit extérieur à faible perméance ($\mu = 360$), l'indice de moisissure monte à 4,5, indiquant une surface importante recouverte de moisissure.

Pour le cas de la toiture isolée par le système FLAG, on a vu qu'il y avait condensation dans l'isolant thermique. On voit par conséquent un risque important de développement de moisissure. Après 10 ans de simulation, la moisissure continue de s'accumuler sous la couche d'étanchéité.

V.2.4.d Critère ASHRAE

Les résultats du critère ASHRAE 160P sont résumés sur la Figure V.2-11 avec les pourcentages de temps pendant lequel le critère ASHRAE n'est pas respecté. Les simulations sont effectuées sur une période de 4 ans pour les interfaces à risque.

Une valeur ASH inférieure à 10 % est considérée comme acceptable pour le dimensionnement hygrique de la paroi.

À part les cas *baseline* 3-6-8, et le cas 2 de la paroi légère, aucun autre cas ne respecte le critère ASH. L'isolation extérieure est le cas le plus favorable, en particulier pour un enduit extérieur à forte perméance. L'isolation intérieure ne respecte pas du tout les critères ASHRAE avec, dans le cas 5, $ASH = 100$ %. On observe la même chose pour le cas de la toiture.

Parmi les trois critères de l'ASHRAE, c'est $\overline{HR_{30J}} < 80$ % qui n'est jamais respecté. Les autres critères, à savoir $\overline{HR_{7J}} < 98$ % et $\overline{HR_{1J}} < 100$ %, sont respectés dans chacun des cas sauf pour la toiture.

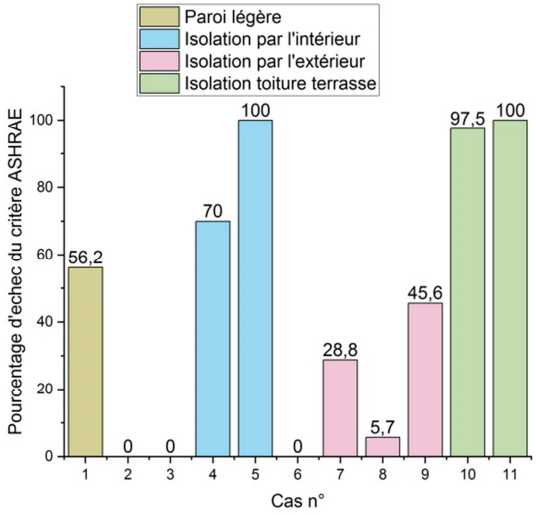


Figure V.2-11 : Critère ASHRAE 160P des cas étudiés

En se basant uniquement sur le critère simplifié de l'ASHRAE, on pourrait conclure au mauvais dimensionnement de toutes nos parois. Cependant, depuis la publication de la norme en 2009, de nombreux utilisateurs ont jugé ce premier critère bien trop sévère. Le critère est rarement respecté quand bien même de nombreuses expériences montrent le contraire. Bien que le critère de l'ASHRAE soit très répandu pour sa façon simplifiée d'aborder le développement de moisissures, il est dorénavant recommandé de privilégier des modèles plus complexes, permettant de calculer l'indice de moisissure ***IM*** (*Mould Index*), ou la croissance de moisissure (*Mould growth*).

V.2.4.e Résistance thermique

Le Tableau V.2-3 montre la perte de résistance thermique de la paroi due à la présence d'humidité. On observe une perte d'environ 10 % par comparaison avec la résistance thermique de la paroi sèche. Cette perte est essentiellement due à la présence de vapeur d'eau dans l'isolant thermique.

Cas n°	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
R_{sec} $(m^2 \cdot K \cdot W^{-1})$	2,38	2,38	0,45	1,69	1,86	0,43	2,3	0,45	2,3	0,32	2
ΔR	-7,9 %	-5,4 %	-7,1 %	-8,5 %	-7,4 %	-2,1 %	-8,8 %	-6,4 %	-10,3 %	-9,4 %	-10%

Tableau V.2-4 :Résistance thermique de la paroi sèche et perte relative de résistance thermique moyenne de la paroi due à la présence d'humidité. Simulations WUFI effectuées sur dix années.

V.3 Étude énergétique globale avec Energy Plus

Energy Plus est un programme de simulation thermique et énergétique des bâtiments développé par le DOE (Department Of Energy, Etats-Unis) permettant de réaliser des études de demande énergétique et de confort. Energy Plus simule le transfert thermique dans les parois, le sol, l'air et les échanges radiatifs et convectifs de façon détaillée. Il est possible de simuler les gains internes du bâtiment provenant des équipements, de l'occupation, de l'éclairage et de leur assigner un scénario propre à chacun. Le logiciel permet d'estimer le besoin en énergie net du bâtiment, la consommation en énergie finale de nombreux systèmes HVAC, et la consommation en énergie primaire. Plusieurs modèles de confort sont intégrés dans les logiciels tels que le modèle de Fanger (PMV et PPD) et le modèle adaptatif (ASHRAE 55 et EN 1521). Les simulations sont effectuées sur des années types, représentatives du climat moyen d'un site.

V.3.1. Description générale de la physique des modèles

La géométrie des bâtiments est modélisée sur Google Sketchup, puis importée sous Energy Plus. Le bâtiment est découpé en zones thermiques de température unique. Une zone thermique peut représenter plusieurs pièces, à condition que celles-ci aient des charges internes similaires (occupation, équipements, scénario...) et des charges externes également similaires (rayonnement solaire et ombres, et donc orientation des parois).
Une fois le découpage fait, la balance énergétique est effectuée pour chaque zone thermique du modèle.

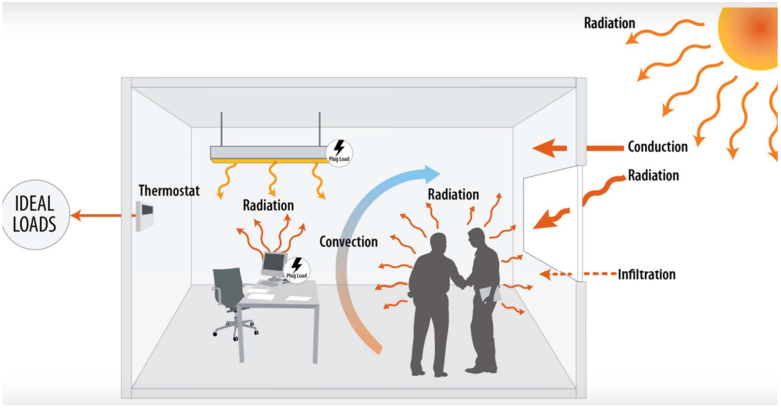


Figure V.3-1 : Échanges thermiques qui ont lieu dans une zone thermique

Les paragraphes ci-dessous donnent quelques informations sur les modèles de calculs utilisés lors des simulations avec Energy Plus.

V.3.1.a Conduction thermique dans les parois

Dans les parois, les flux thermiques de chaque surface (intérieure et extérieure) à l'instant t sont reliés linéairement aux températures de surfaces à l'instant t, aux températures de surface d'instants précédents, et également aux flux thermiques des surfaces d'instants précédents.

L'équation linéaire qui lie ces variables est appelée fonction de transfert de conduction (FTC). Ses coefficients sont constants est ne dépendent que des propriétés physiques de la paroi.
La méthode utilisée par Energy Plus pour le calcul de la FTC est la méthode de représentation d'état (*State Space method)* [11]–[13]. La représentation d'état du transfert thermique dans les parois s'écrit de la manière suivante :

$$(\dot{T}) = [\boldsymbol{A}](T) + [\boldsymbol{B}]\begin{pmatrix} T_i \\ T_e \end{pmatrix} \tag{V.17}$$

$$\begin{pmatrix} q_{ki} \\ q_{ke} \end{pmatrix} = [\boldsymbol{C}](T) + [\boldsymbol{D}]\begin{pmatrix} T_i \\ T_e \end{pmatrix} \tag{V.18}$$

avec $(\boldsymbol{T})$ le vecteur des n variables d'état, $\boldsymbol{T_i}$ et $\boldsymbol{T_e}$, les températures intérieures et extérieures, $\boldsymbol{q_{ki}}$ et $\boldsymbol{q_{ke}}$, les flux thermiques conductifs intérieurs et extérieurs. $[\boldsymbol{A}]$, $[\boldsymbol{B}]$, $[\boldsymbol{C}]$ et $[\boldsymbol{D}]$ sont respectivement les matrices d'état, de commande, d'observation et d'action. Elles sont fonction des propriétés physiques des parois.

Par le biais de calculs algébriques sur les matrices, le vecteur d'état $(\boldsymbol{T})$ est éliminé du système d'équations, et le vecteur de sortie $\begin{pmatrix} q_{ki} \\ q_{ke} \end{pmatrix}$ est directement relié au vecteur de commande $\begin{pmatrix} T_i \\ T_e \end{pmatrix}$ et aux valeurs des vecteurs de sortie et de commande des instants précédents.

V.3.1.b Bilan de surface extérieure

Le bilan thermique des surfaces extérieures effectué par Energy Plus est le suivant :

$$q_{CLO,e} + q_{GLO,e} + q_{ce} = q_{ke} \tag{V.19}$$

avec $q_{CLO,e}$ le flux radiatif solaire direct et diffus (courtes longueurs d'onde) arrivant sur la surface extérieure, $q_{GLO,e}$ le flux radiatif net grandes longueurs d'ondes de la surface extérieure, q_{ce} le flux convectif avec l'extérieur, et q_{ke} le flux conductif dans la paroi, déterminé par la méthode de la FTC.

i Rayonnement courtes longueurs d'onde

Le flux radiatif solaire dépend de la localisation du bâtiment, de l'orientation des parois, des conditions météo et des propriétés de surface des matériaux de la couche extérieure. Energy Plus détermine l'irradiation solaire directe et diffuse à l'aide du modèle « *tau* » [14] (chap.14). Les irradiations solaires directes et diffuses sont déterminées par les relations :

$$E_b = E_0 . e^{-\tau_b m^{ab}} \tag{V.20}$$

$$E_d = E_0 . e^{-\tau_d m^{ad}} \tag{V.21}$$

avec E_b l'irradiation solaire directe normale ($W \cdot m^{-2}$), E_d l'irradiation solaire diffuse horizontale ($W \cdot m^{-2}$), E_0 l'irradiation solaire extraterrestre, m est la masse de l'air qui dépend de la hauteur angulaire du soleil, τ_b et τ_d les épaisseurs optiques diffuses et directes déterminées par

l'ASHRAE pour plus de 5 000 localisations. Les termes ab et ad sont les exposants de masse d'air diffus et directe, calculés à partir de τ_b et τ_d.

ii Rayonnement grandes longueurs d'onde

Pour le calcul du flux net radiatif grandes longueurs d'onde, Energy Plus prend en compte les échanges radiatifs infrarouges avec le sol, l'air et le ciel.

$$q_{GLO,e} = q_{sol} + q_{air} + q_{ciel} \tag{V.22}$$

Les échanges radiatifs infrarouges nets sont calculés à partir de la loi de Stephan-Boltzmann :

$$q_{GLO,e} = \epsilon\sigma F_{sol}\left(T_{sol}^4 - T_{se}^4\right) + \epsilon\sigma F_{air}\left(T_{air}^4 - T_{se}^4\right) + \epsilon\sigma F_{ciel}\left(T_{ciel}^4 - T_{se}^4\right) \tag{V.23}$$

avec ϵ l'émissivité infrarouge de la surface, σ la constante de Stephan-Boltzmann, F le facteur de vue du sol, de l'air ou du ciel, T la température du sol, de l'air ou du ciel, et T_{se} la température de surface extérieure. Les facteurs de vue sont obtenus par les expressions de Walton [15]. Le calcul de la température de ciel est fait avec les modèles de Clark et Allen [16] et Walton [15] :

$$T_{ciel} = (\epsilon_{ciel})^{0,25} T_e \tag{V.24}$$

$$\epsilon_{ciel} = (0{,}787 + 0{,}764.\ln\left(\frac{T_{dp}}{273}\right))(1 + 0{,}0224N - 0{,}0035N^2 + 0{,}00028N^3) \tag{V.25}$$

T_{ciel} est la température du ciel en K, ϵ_{ciel} l'émissivité du ciel, T_e la température extérieure en K, T_{dp} la température de rosée en K, et N la nébulosité du ciel en dixième ($N = 0$ correspond à un ciel clair et $N = 1$ à un ciel totalement couvert).

iii Convection externe

Le flux de convection de la surface extérieure est calculé selon la formule classique :

$$q_{ce} = h_{ce}(T_{se} - T_e) \tag{V.26}$$

avec T_{se} la température de surface extérieure, T_e la température de l'air extérieur, h_{ce} le coefficient de convection de la surface extérieure. Energy Plus détermine h_{ce} avec le modèle DOE-2 :

$$h_{ce} = h_n + R_f(\sqrt{h_n^2 + (aV^b)^2} - h_n) \tag{V.27}$$

$$h_n = 1{,}31|\Delta T|^{\frac{1}{3}} \tag{V.28}$$

avec h_n le coefficient de convection naturelle (calculé dans ce cas-ci pour une paroi verticale), R_f l'indice de rugosité de la paroi, V la vitesse du vent, a et b des coefficients variant selon que

la paroi soit au vent ou sous le vent et ΔT le gradient de température entre la surface extérieure et l'air.

V.3.1.c Bilan de surface intérieure

Le bilan thermique de surface intérieure est modélisé par quatre composantes de flux thermique : la conduction à travers la paroi, la convection avec l'air, l'absorption et la réflexion du rayonnement courtes longueurs d'onde et les échanges radiatifs grandes longueurs d'onde. Le rayonnement courtes longueurs d'onde provient du rayonnement solaire entrant dans la zone à travers les fenêtres et de l'émittance des sources de lumière internes. Les échanges radiatifs grandes longueurs d'onde incluent l'absorption et l'émittance des sources radiatives à faibles températures, telles que les autres surfaces, les équipements et les occupants. Energy Plus effectue le bilan des flux suivants :

$$q_{GLO,s} + q_{CLO,l} + q_{GLO,e} + q_{ki} + q_{CLO,i} + q_{ci} = 0 \tag{V.29}$$

avec $q_{GLO,s}$ le flux radiatif GLO net entre la surface et les autres surfaces de la zone, $q_{CLO,l}$ le flux radiatif CLO provenant des luminaires, $q_{GLO,e}$ le flux radiatif GLO provenant des équipements, q_{ki} le flux thermique de conduction de la paroi calculé par méthode de la FTC, $q_{CLO,i}$ le flux radiatif solaire CLO absorbé par la paroi, q_{ci} le flux convectif intérieur avec l'air de la zone.

i Flux radiatif net GLO

Les échanges radiatifs entre les surfaces de la zone sont calculés par le modèle de Hottel [17] :

$$q_{i,j} = A_i F_{i,j}(T_i^4 - T_j^4) \tag{V.30}$$

avec $q_{i,j}$ le flux thermique net GLO entre la surface i et j, A_i l'aire de la surface i, T_i et T_j les températures des surfaces i et j, $F_{i,j}$ sont des coefficients d'échange entre des paires de surfaces, calculés d'après le modèle de Hottel. Ces coefficients prennent en compte les échanges radiatifs entre deux surfaces via tous les chemins possibles (réflexions, absorption et réémission des autres surfaces). Energy Plus intègre également les surfaces des meubles présents dans la zone thermique pour les échanges radiatifs GLO.

Pour le flux radiatif GLO des équipements, on définit la fraction radiante de l'équipement qui contribue au transfert thermique sur la surface. Cette fraction radiante est ensuite distribuée sur toutes les surfaces de la zone.

ii Flux radiatif CLO

Les flux radiatifs CLO des luminaires et du soleil sont distribués sur l'ensemble des surfaces de la zone.

iii Convection interne

Le flux de convection de la surface intérieure est calculé selon la formule :

$$q_{ci} = h_{ci}(T_{si} - T_i) \tag{V.31}$$

avec h_{ci} le coefficient de convection de la surface intérieure. Le terme h_{ci} est décrit par l'algorithme TARP [15] (équation (V.28)).

V.3.1.d Bilan thermique de l'air dans les zones

Le bilan thermique de l'air dans une zone est :

$$C_z \frac{dT_z}{dt} = \sum_j \dot{Q}_{ij} + \sum_j q_{cij} + \sum_j \dot{m}_j \left(T_{zj} - T_z\right) + \dot{m}_{inf} + \dot{m}_{vent} C_p (T_e - T_z) + \dot{Q}_{syst} \tag{V.32}$$

avec $C_z \frac{dT_z}{dt}$ l'énergie stockée dans l'air de la zone, $\dot{Q}_{ij}$ les charges internes convectives (équipements, occupants), q_{cij} les flux convectifs des surfaces intérieures, $\sum_j \dot{m}_j \left(T_{zj} - T_z\right)$ le transfert de chaleur de l'air entre la zone et les autres zones j, $\dot{m}_{inf}$ et $\dot{m}_{vent}$ le débit massique d'air dû à l'infiltration et à la ventilation, respectivement, et $\dot{Q}_{syst}$ la puissance dégagée par les systèmes énergétiques pour réguler la température de la pièce.

V.3.2. Description des cas d'études

On se propose d'étudier l'influence énergétique de la rénovation de bâtiments par le *blanket* NGF pour plusieurs climats européens. Dans un premier temps, on étudie le besoin net en chauffage et en refroidissement d'un bâtiment tertiaire rénové par 1 cm, 3 cm et 5 cm d'isolant NGF par l'intérieur.

Dans un second temps, on étudie le besoin en énergie finale et en énergie primaire d'un appartement rénové par le système d'isolation Trocellen. On s'intéresse également à l'effet de l'isolation sur le confort d'été du logement.

D'après la classification de Köppen, le type de climat dominant en Europe est le climat froid (70 %) principalement pour l'Europe de l'Est, suivi du climat tempéré (30 %) réparti entre l'Europe de l'Ouest et le tour de la méditerranée.

Nous avons donc choisi pour les simulations quatre villes représentatives du climat Européen : Valence, Nice, Bruxelles, Stockholm.

Ville	Classification de Köppen	Description	Autres villes au climat similaire
Valence (Esp)	Bsk	Semi-Aride, sec et froid	Saragosse, Konya
Nice (Fra)	Csa	Méditerranéen, été chaud	Barcelone, Lisbonne, Rome, Athènes
Bruxelles (Bel)	Cfb	Océanique, été tempéré	Lyon, Paris, Dublin, Berlin
Stockholm (Sue)	Dfb	Continental humide, froid sans saison sèche	Budapest, Kiev, Moscou

Tableau V.3-1: Villes sélectionnées pour les simulations avec Energy Plus et description des climats associés d'après la classification de Köppen.

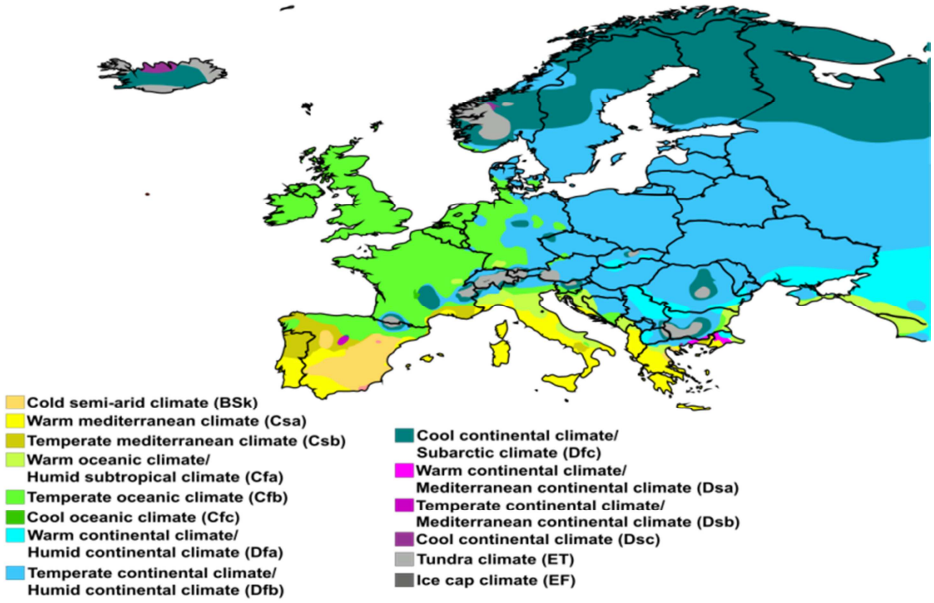


Figure V.3-2 : Classification de Köppen du climat en Europe

V.3.2.a Cas du bâtiment tertiaire

Le bâtiment étudié a une surface de 500 m^2 avec un ratio fenêtre/mur de 20 %. Il est divisé en cinq zones thermiques : quatre zones périphériques modélisant des bureaux, et une zone centrale modélisant une salle de réunion ou une salle de pause. Le bâtiment possède également une zone thermique à l'étage non régulé en température, pour le stockage de matériel.

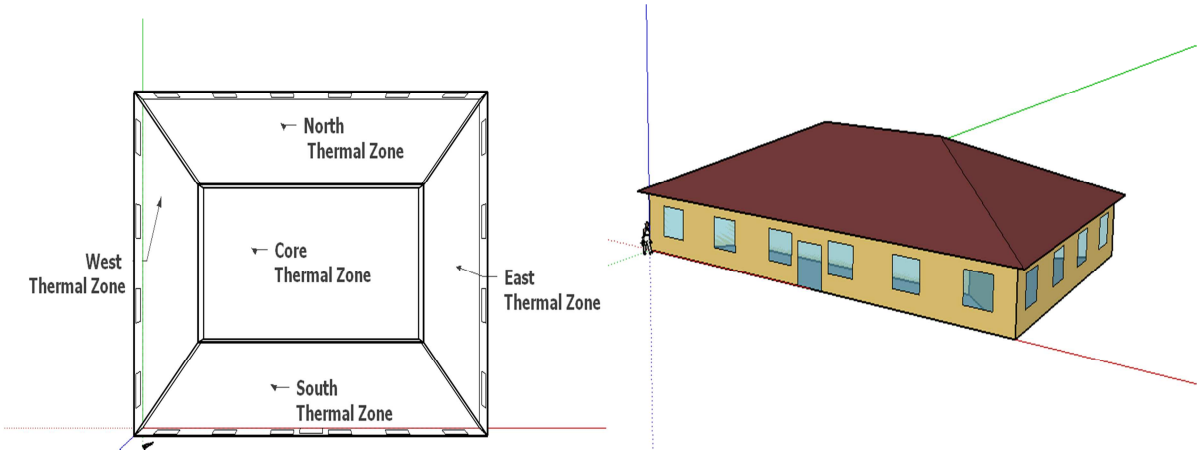


Figure V.3-3 : Géométrie du bâtiment tertiaire et découpage des zones thermiques.

Les murs en contact avec l'extérieur sont composés de 2,5 cm d'enduit extérieur, 20 cm de béton et 1,5 cm de plâtre intérieur. L'isolant est ajouté sur la face intérieure du béton lors de la rénovation thermique. Les meubles sont modélisés par une masse interne ayant une surface de 200 m^2 par zone. Les charges thermiques internes sont les occupants, les luminaires et les équipements électriques. Les valeurs nominales des charges internes sont les suivantes :

- 132 W par personne, avec une personne tous les 18 m^2
- 11 $W \cdot m^{-2}$ pour la lumière
- 11 $W \cdot m^{-2}$ pour les équipements électriques

Ces valeurs nominales sont ensuite modulées par les plannings d'activités que l'on trouvera en Annexe 9

La ventilation est modélisée par un apport d'air neuf de 30 $m^3 \cdot h^{-1}$ par personne. L'infiltration vaut 0,5 $vol \cdot h^{-1}$ la nuit et 0,12 $vol \cdot h^{-1}$ la journée (bâtiment pressurisé). Enfin, les locaux sont conditionnés pour les plages de température suivantes :

- 21-24 °C pour les heures d'occupation
- 15,5-27 °C pour les heures inoccupées

On s'intéresse uniquement au besoin énergétique net nécessaire pour maintenir ces plages de températures, ainsi aucun système énergétique n'est réellement modélisé. Tout se passe comme si le système de chauffage et de refroidissement avait un rendement parfait et une capacité infinie pour pouvoir atteindre les températures de consigne immédiatement.

V.3.2.b Cas de l'appartement

L'appartement étudié fait 70 m^2 et il est issu d'un bâtiment de logements collectifs. Les conditions au plafond et au sol sont considérées comme adiabatiques car les surfaces sont en contact avec les appartements voisins. Comme pour le bâtiment tertiaire, les murs sont composés de 20 cm de béton, d'un enduit extérieur et d'un parement intérieur. Le système

complet de Trocellen est ensuite ajouté lors de la rénovation. Le logement est modélisé selon la géométrie décrite sur la figure ci-dessous. En été, les parois vitrées sont occultées en présence de rayonnement solaire.

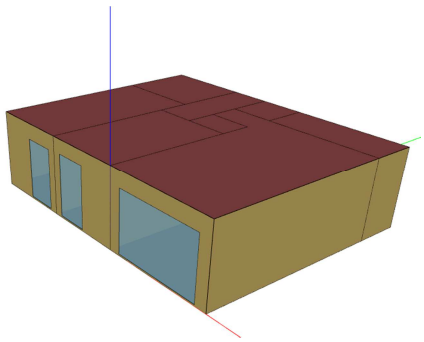


Figure V.3-4 : Géométrie de l'appartement étudié

Le logement est simulé avec les charges thermiques nominales suivantes :

- 120 W par personne pour une occupation avec trois personnes.
- 4 $W \cdot m^{-2}$ pour la lumière
- 4 $W \cdot m^{-2}$ pour les équipements électriques

Les charges thermiques nominales sont également modulées avec les plannings de l'Annexe 9. Un taux de renouvellement d'air de 0,8 $vol \cdot h^{-1}$ est utilisé pour la modélisation de la ventilation naturelle et l'infiltration. Les consignes en température sont 19 °C pour le chauffage et 24 °C pour le refroidissement. La plage de température est maintenue grâce à un système énergétique parfait, nous indiquant le besoin énergétique net de l'appartement. Pour remonter au besoin en énergie finale, on utilisera COP = 0,8 pour l'installation de chauffage et COP = 3 pour l'installation frigorifique. La consommation en eau chaude sanitaire est simulée pour un besoin journalier de 50 L par personne à 40 °C, avec un chauffe-eau à gaz de rendement 80 %.
Le confort thermique des appartements est étudié avec l'indice de confort thermique TCI et le modèle de confort adaptatif de la norme EN-15251 pour la classe II (bâtiments neufs et rénovation). Deux villes avec un été particulièrement chaud sont choisies pour la simulation du confort d'été : Barcelone (Csa) et Lyon (Cfb).

V.3.3. Résultats des simulations

V.3.3.a Besoin net du bâtiment tertiaire

La Figure V.3-5 montre les besoins nets annuels en chauffage et en refroidissement pour le bâtiment tertiaire étudié. Les demandes énergétiques sont calculées pour quatre villes représentatives du climat européen. Premièrement, on simule le besoin net pour un bâtiment non isolé caractéristique des années < 1974 (Modèle *Baseline*). Ensuite, on regarde le cas d'une rénovation par l'intérieur avec le *blanket* NGF pour plusieurs épaisseurs d'isolant.

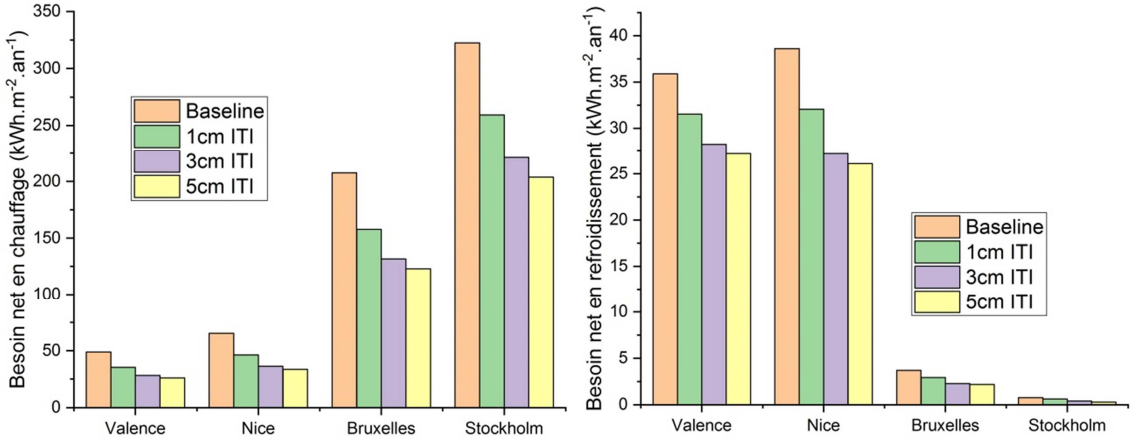


Figure V.3-5 : (gauche) Besoin annuel net en chauffage du bâtiment tertiaire, (droite) Besoin annuel net en refroidissement du bâtiment tertiaire.

On voit que les premiers centimètres d'isolant sont ceux qui réduisent quantitativement le plus le besoin. Pour le besoin net en chauffage, on économise 20 à 30 % d'énergie avec un seul centimètre d'isolant et 37 à 48 % d'énergie avec 5 cm. L'impact sur le besoin net en refroidissement est intéressant uniquement pour les climats avec un été chaud. Pour les climats de Valence (semi-aride) et Nice (méditerranéen), l'isolation intérieure avec 5 cm d'isolant permet d'économiser 24 à 32 % d'énergie.

V.3.3.b Besoin en énergie finale et besoin en énergie primaire de l'appartement

Les résultats de simulation du besoin net en énergie nécessaire au confort sont présentés en Figure V.3-6. On distingue deux cas selon le climat simulé. Pour un climat semi-aride (Bsk) et méditerranéen (Csa), la part de la demande en refroidissement est prédominante de juin à septembre (68 % pour Valence et 57 % pour Nice). Pour ces deux climats, la rénovation thermique est intéressante autant pour le besoin en chauffage que le besoin en refroidissement. Pour le climat de Valence, la rénovation thermique permet d'économiser sur l'année 23 % sur la demande en refroidissement et 24 % sur la demande en chauffage. Pour Nice, l'économie réalisée sur le refroidissement est de 23 % et celle sur le chauffage est de 29 %. Pour ces deux climats, la rénovation thermique avec le système Trocellen réduit considérablement le besoin en refroidissement en été, et annihile presque le besoin en chauffage pour l'hiver.

Pour le climat océanique (Cfb) et le climat continental (Dfb), la majorité du besoin énergétique est destinée au chauffage de septembre à mai, avec respectivement une part de 93 % pour Bruxelles et 96 % pour Stockholm pour les cas *baselines*. Les températures extérieures des mois hivernaux sont très basses et la demande en chauffage est donc en conséquence, au-delà de 30 $kWh \cdot m^{-2}$ pour certains mois et jusqu'à 50 $kWh \cdot m^{-2}$ pour le mois de janvier à Stockholm. La réduction du besoin net en chauffage grâce à l'isolation est très importante, 54 % pour Bruxelles et 51 % pour Stockholm.

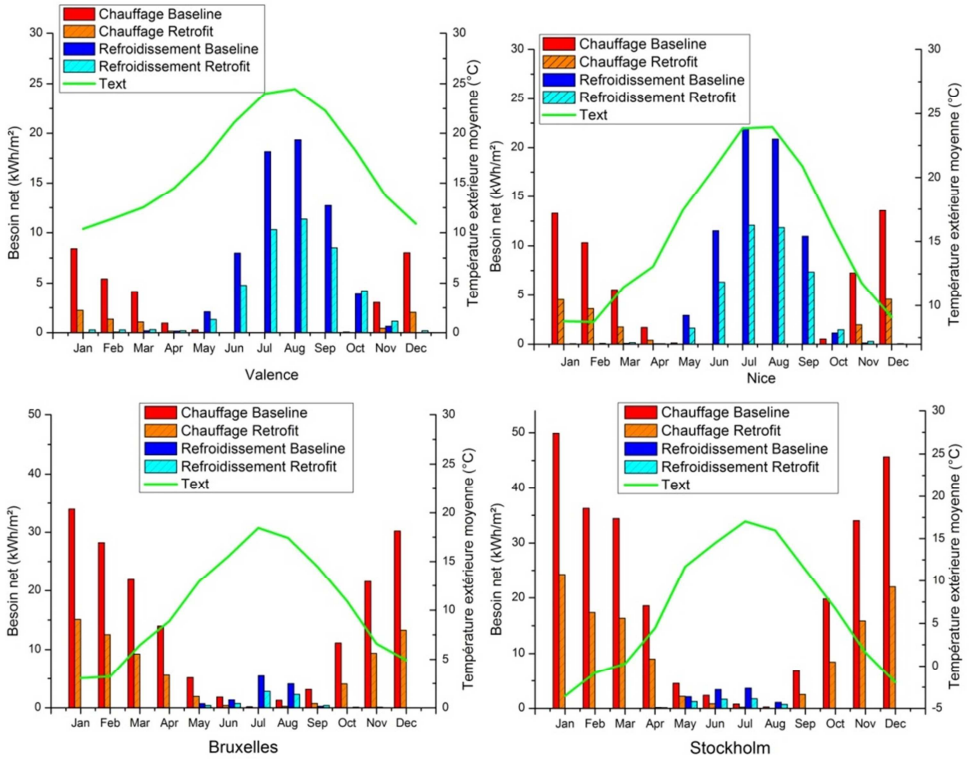


Figure V.3-6 : Besoin mensuel net en chauffage et en refroidissement pour les villes de Valence (Bsk), Nice (Cas), Bruxelles (Cfb) et Stockholm (Dfb). Le cas *baseline* correspond à un appartement non isolé, le cas *retrofit* correspond à la rénovation de l'appartement par le système d'isolation intérieur Trocellen.

Les résultats montrent qu'en Europe, l'isolation est vraiment nécessaire et efficace pour les climats continentaux et océaniques. Les 2,5 cm d'isolant NGF du système Trocellen permettent de réduire considérablement le besoin en chauffage. La Figure V.3-6 donne le besoin net en chauffage et en refroidissement pour les quatre villes étudiées avant et après rénovation. On passe d'un besoin net en chauffage de 182 $kWh \cdot m^{-2}$ avant rénovation à 77 $kWh \cdot m^{-2}$ après rénovation pour le cas de Bruxelles, et de 268 $kWh \cdot m^{-2}$ à 126 $kWh \cdot m^{-2}$ pour le cas de Stockholm. Pour le climat méditerranéen et semi-aride, l'isolation permet de réduire le besoin net en refroidissement de 69 $kWh \cdot m^{-2}$ à 45 $kWh \cdot m^{-2}$ pour Valence et de 74 $kWh \cdot m^{-2}$ à 44 $kWh \cdot m^{-2}$ pour Nice. En associant l'isolation intérieure avec une ventilation nocturne efficace pour les mois estivaux, le besoin en refroidissement passe sous les 35 $kWh \cdot m^{-2}$.

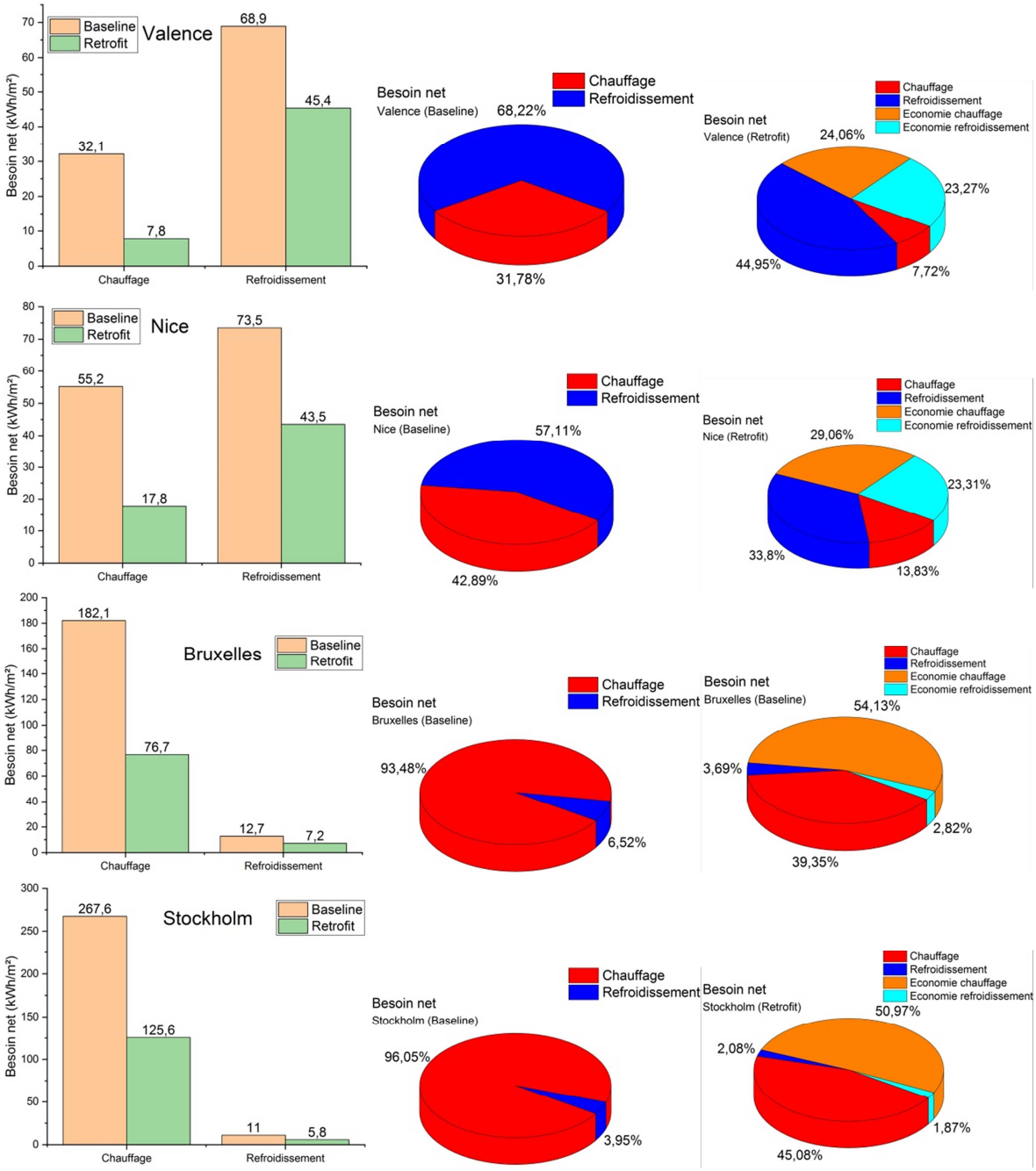


Figure V.3-7 : Besoin annuel net en chauffage et en refroidissement pour les villes de Valence (Bsk), Nice (Csa), Bruxelles (Cfb) et Stockholm (Dfb), pour une année.

Afin de comparer les charges thermiques en chauffage et en refroidissement d'un point de vue économique et écologique, on utilise comme variable le besoin en énergie finale, *i.e.* l'énergie finale consommée par l'utilisateur, celle qui lui sera facturée. Pour cela, on divise le besoin net par le coefficient de performance de l'installation de chauffage ou de refroidissement. Pour le chauffage, nous prendrons un COP égal à 0,8 caractéristique d'un système de chauffage à gaz ou à fioul de rendement moyen (chaudière, chauffage urbain) et pour le refroidissement, nous prendrons un COP égal à 3, caractéristique des systèmes de refroidissement domestiques (climatiseur). Les résultats de simulations de l'énergie finale totale consommée sont présentés

en Figure V.3-8, avec le détail des consommations (chauffage, climatisation, équipements électriques, éclairage et eau chaude sanitaire).

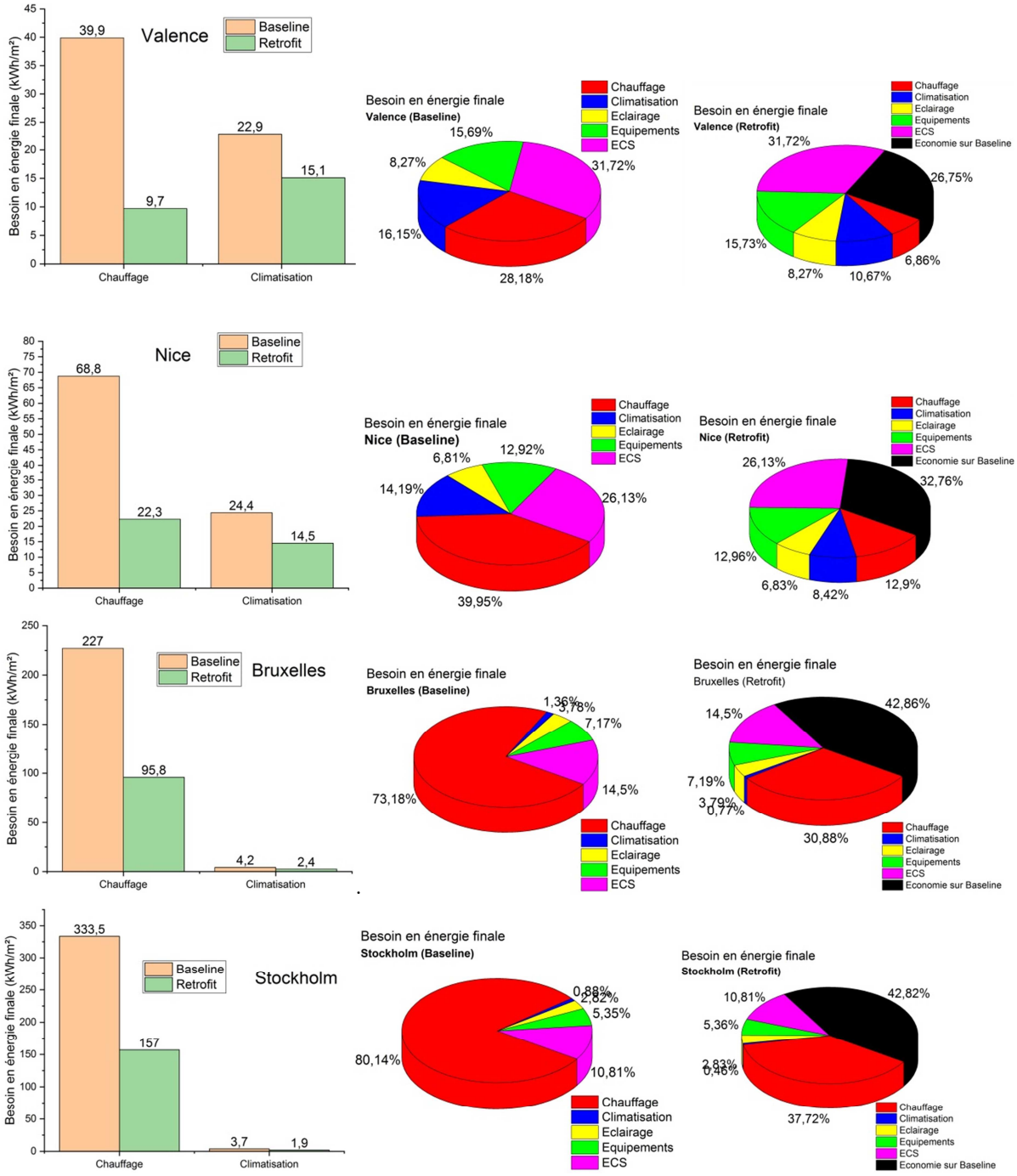


Figure V.3-8 : Résultats de simulation sur le besoin annuel tous usage en énergie finale

Du point de vue du consommateur, l'énergie finale consommée, et donc facturée, est principalement utilisée pour le chauffage des locaux. Sa part varie de 30 % pour les climats chauds et jusqu'à 80 % pour les climats océanique et continental. Il s'en suit la consommation pour l'eau chaude sanitaire, pour la climatisation (climat Bsk et Csa uniquement), pour les équipements électriques, puis pour l'éclairage. Les résultats de consommation avec l'isolation thermique de Trocellen ont un impact très significatif sur la consommation finale en chauffage,

et ce d'autant plus importante que le climat est froid. Pour le climat semi-aride et méditerranéen, la consommation en chauffage devient très faible et sa proportion devient proche – voir plus faible – que la consommation en énergie finale liée à l'eau chaude sanitaire. Pour les climats continentaux et océaniques, le système de Trocellen réduit la consommation en chauffage de 227 $kWhef \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ à 95 $kWhef \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ pour Bruxelles et de 334 $kWhef \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ à 157 $kWhef \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ pour Stockholm. Globalement, le système d'isolation Trocellen réduit de moitié la consommation énergétique du logement pour les cas étudiés grâce à l'efficacité du *blanket* NGF.

La Figure V.3-9 montre la consommation en énergie primaire (Cep) du logement individuel en fonction de l'épaisseur d'isolant NGF dans le système Trocellen pour le climat de Nice et de Bruxelles. L'indice Cep comptabilise la consommation pour le chauffage, la climatisation l'éclairage et l'eau chaude sanitaire. Pour le calcul de l'énergie primaire, il faut prendre en compte les pertes énergétiques par la transformation et l'acheminement de l'énergie en multipliant le besoin en énergie finale par un facteur de conversion égal à 2,58 pour l'électricité et 1 pour les énergies fossiles. L'augmentation de l'épaisseur de l'isolant joue essentiellement sur la consommation en chauffage et dans une moindre mesure sur la climatisation. En isolant suffisamment pour obtenir un bâtiment BBC ($e > 8$ cm), la consommation en énergie primaire atteint 127 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ pour Nice, et 160 $kWh \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$ pour Bruxelles. Sur les figures, on peut voir les exigences de l'indice Cep pour la rénovation de bâtiment (RT existant) et pour les bâtiments neufs de la RT 2012 en France. Ces exigences sont modulées en fonction du climat.

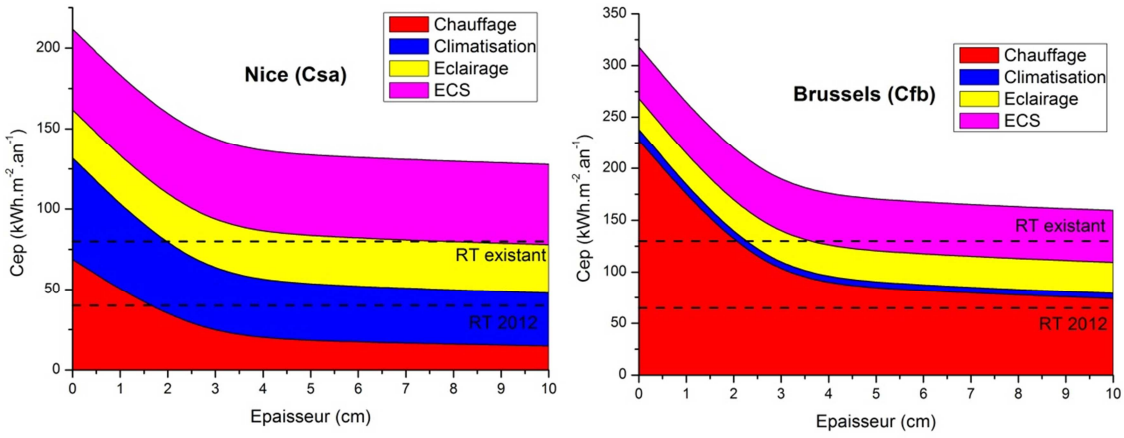


Figure V.3-9 : Consommation en énergie primaire pour l'appartement de 70 m^2 en fonction de l'épaisseur d'isolant NGF appliquée.

On voit qu'une bonne isolation thermique seule ne suffit pas à respecter les exigences de consommation en énergie primaire des réglementations thermiques actuelles, il faut également miser sur l'amélioration de l'efficacité des systèmes énergétiques. Pour le climat Csa, l'eau chaude sanitaire devient la part la plus importante de la consommation (50 $kWhep \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$). Avec l'utilisation de chauffe-eau plus performant (thermodynamique ou solaire), on peut réduire la consommation en eau chaude sanitaire à 25 $kWhep \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$. La consommation en climatisation arrive en seconde position avec 33 $kWhep \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$. Néanmoins, il est possible de

se passer de la climatisation pour assurer le confort d'été en occultant correctement les surfaces vitrées et en surventilant le bâtiment pendant la nuit. Pour l'éclairage, les simulations ont été faites en se basant sur la consommation moyenne des Français (30 $kWhep \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$). Cependant, avec l'utilisation de sources lumineuses basse consommation (fluocompacte ou LED), il est possible d'obtenir une consommation pour l'éclairage inférieure à 10 $kWhep \cdot m^{-2} \cdot an^{-1}$.

En intégrant l'amélioration des systèmes énergétiques lors de la rénovation, on obtient des BBC respectant les critères de la RT existant. Dans le cas de bâtiments neufs, la conception bioclimatique doit permettre de réduire encore la consommation énergétique, en favorisant l'éclairage naturel et en maximisant les apports solaires en hiver.

V.3.3.c Confort d'été de l'appartement

En l'absence de système de climatisation, il faut s'assurer du confort d'été des occupants dans le logement. La Figure V.3-10 montre les résultats de simulations de l'indice de confort thermique (TCI) pour une isolation thermique par l'intérieur (ITI) de 1 cm, 3 cm et 5 cm, une isolation thermique par l'extérieur (ITE) de 5 cm avec ou sans ventilation nocturne.

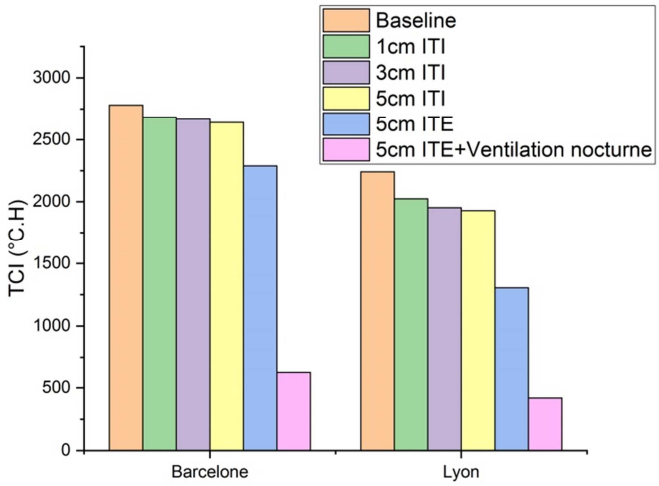


Figure V.3-10 : Indice de confort thermique pour l'appartement (70 m^2) pour les climats de Barcelone (Csa) et Lyon (Cfb).

L'isolation par l'intérieur a une influence positive sur le confort d'été mais relativement restreinte, et quasi indépendante de l'épaisseur (-5 % sur le TCI pour Barcelone et -13 % pour Lyon). L'isolation par l'extérieur a une influence plus significative sur le confort avec une réduction du TCI de 20 % pour Barcelone et 40 % pour Lyon. En utilisant une surventilation nocturne efficace (~ 6 $vol \cdot h^{-1}$), l'amélioration du confort est conséquente et permet de diminuer le TCI d'environ 80 %. La Figure V.3-11 montre la température opérative moyenne dans l'appartement et les limites de la norme EN-15251 pour 80 % et 90 % de personnes satisfaites par l'environnement thermique. On voit que l'ITE seule (violet) réduit grandement les pics de surchauffe. La température est réduite en moyenne de 0,5 à 1 °C sur tout l'été, mais cela n'est pas suffisant pour atteindre le confort thermique. En revanche, l'ITE associée à la ventilation

nocturne (vert) réduit la température intérieure de 3,5 à 4,5 °C en moyenne et permet d'atteindre régulièrement la zone de confort.

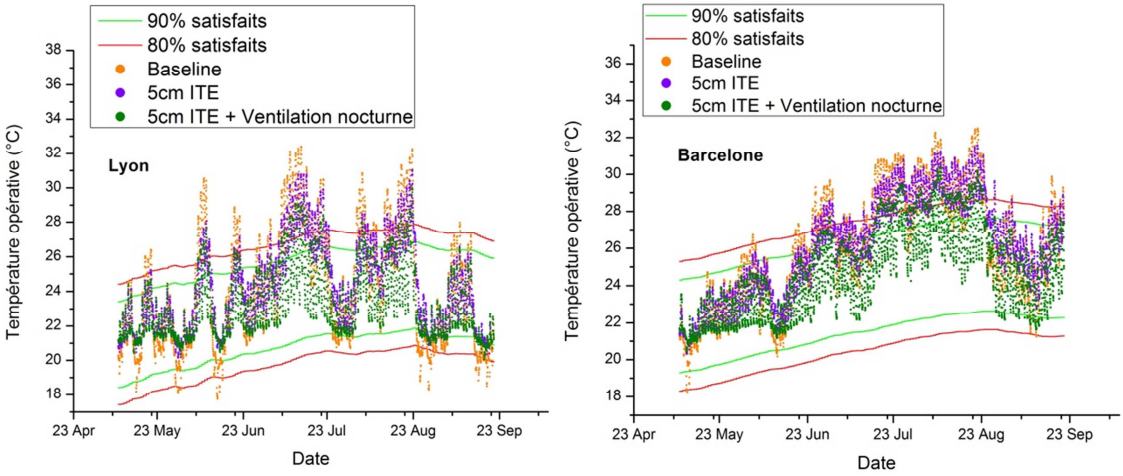


Figure V.3-11 : Température opérative dans l'appartement pour la période estivale

V.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons mis en place un modèle thermique 1 D simplifié pour étudier le facteur d'amortissement et le déphasage de parois isolées par le *blanket* NGF selon plusieurs configurations, et pour quatre murs structurants. Les résultats de simulation ont montré que l'ajout d'isolant lissait les variations de températures de la surface intérieure du mur. La faible conductivité thermique du *blanket* permet de réduire les variations de température et de faire en sorte que la température d'ambiance se rapproche de la température de consigne. Le mur structurant apporte de la masse thermique en fonction de sa densité et de sa chaleur spécifique, il influence le déphasage. L'utilisation de 2 cm d'isolant divise le facteur d'amortissement par 10, et augmente le déphasage de 1 à 3 h avec des meilleurs résultats pour l'isolation par l'extérieur. En isolant avec 2 cm par l'intérieur et l'extérieur, le facteur d'amortissement est divisé par 100 et les fluctuations de températures sont insignifiantes. L'isolant influence également le déphasage, non pas par l'ajout de masse thermique (celle-ci est négligeable), mais encore une fois par sa faible conductivité thermique. C'est pourquoi nous avons un déphasage de seulement 4,5 heures pour le mur en pierre ayant la plus forte masse thermique (mais avec $\lambda = 2{,}91\ \mathrm{W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$), alors que le déphasage est de 10,5 heures pour le mur en briques creuses (avec $\lambda = 0{,}15\ \mathrm{W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}}$).

Le modèle nous a permis d'étudier la rentabilité de l'isolant NGF en comparant son coût de production avec les bénéfices réalisés sur les déperditions thermiques après sa pose. L'épaisseur économique qui minimise les coûts de l'isolant et les coûts liés aux déperditions thermiques est estimée à 4 cm pour un gradient de température moyen de 10 °C. Le prix du *blanket* aérogel reste aujourd'hui assez élevé et difficile à estimer (15 à 30 $€ \cdot \mathrm{m^{-2}}$ par centimètre d'isolant). Cependant, en incluant le gain de place engendré par l'isolant NGF, celui-ci devient alors plus rentable qu'un isolant classique pour des agglomérations où le prix de l'immobilier est supérieur à 4 600 $€ \cdot \mathrm{m^{-2}}$.

L'étude hygrothermique a permis d'étudier les effets de l'humidité sur quatre parois : une paroi fine, une paroi massive isolée par l'intérieur, une paroi massive isolée par l'extérieur et une toiture-terrasse. Les résultats pour le climat de Grenoble sont résumés dans le Tableau V.4-1.

De manière générale, on remarque qu'il est préférable d'avoir des parements extérieurs perméables à la vapeur d'eau afin de pouvoir évacuer le surplus d'humidité. Pour les cas de la paroi légère, de l'isolation par l'intérieur, et de l'isolation par l'extérieur, l'humidité dans la paroi décroît, permettant à celle-ci de sécher au cours du temps. De plus, l'humidité relative n'atteint jamais 100 % dans la paroi, la préservant de tout risque de condensation. Néanmoins, d'après le critère d'indice de moisissures (IM), certaines configurations sont propices au développement de moisissures (cas n °4, cas n °5 et cas n °9). Le cas de la toiture présente les risques de condensation les plus importants et un fort risque de développement de moisissures.

En augmentant la perméabilité à la vapeur d'eau de la couche d'étanchéité extérieure (vis-à-vis de l'eau liquide), ce risque est fortement réduit.
Enfin, la perte de résistance thermique associée à l'adsorption d'eau dans la paroi est estimée à 6-10 %.

Configuration	*Cas n°*	s_{10}	u_i	RC	IM	ΔR
Paroi légère	1	0,7 %	✓	✓	2,5	-7,9 %
	2	3,7 %	✓	✓	0	-5,4 %
Isolation intérieure	3	23 %	✓	✓	0	-7,1 %
	4	10,8 %	✓	✓	4	-8,5 %
	5	12,3 %	✓	✓	6	-7,4 %
Isolation extérieure	6	22 %	✓	✓	0	-2,1 %
	7	37 %	✓	✓	1	-8,8 %
	8	23 %	✓	✓	1	-6,4 %
	9	35,5 %	✓	✓	4	-10,3 %
Toiture	10	21 %	✓	✓	6	-9,4 %
	11	20,8 %	x	x	6	-10 %

Tableau V.4-1 : Résumé des résultats de simulation hygrique. s_{10} est le taux de séchage de la paroi sur 10 ans, u_i est la tendance de séchage de chacune des couches de la paroi, RC est le risque de condensation, IM est l'indice de moisissure maximal, ΔR est la perte relative de résistance thermique de la paroi en prenant en compte l'humidité relative.

Pour finir, une simulation de bâtiment à l'échelle globale a été menée pour quatre climats européens (semi-aride, méditerranéen, océanique et continental) sur un bâtiment tertiaire et un appartement issu d'un bâtiment de logements collectifs. Les résultats sur le bâtiment tertiaire ont montré qu'une isolation de 5 cm avec le *blanket* NGF réduisait la consommation en chauffage de 50 % pour tous les climats, et la consommation en climatisation de 30 % pour les deux climats chauds. La simulation de consommation énergétique pour le bâtiment a montré que le besoin net en chauffage (Q_{net} en kWh) et l'épaisseur de l'isolation (e en cm) étaient liés par une loi de puissance du type $Q_{net} \propto e^{-a}$ avec a l'exposant qui vaut entre 0,2 et 0,3 selon le climat. Lorsque le logement est bien isolé ($e > 8$ cm), la consommation en énergie primaire pour le chauffage est fortement réduite et sa part revient à hauteur des autres types de consommation – voire devient plus faible pour le climat méditerranéen et semi-aride –.
Les simulations de consommation en énergie primaire sont effectuées pour un logement Français moyen, *i.e* un logement ayant des systèmes HVAC et un mode de vie menant à la consommation Française moyenne. Les résultats des simulations montrent que la rénovation thermique d'un logement avec le système étudié ne suffit pas pour respecter la RT 2012, mais qu'il faut la combiner avec la rénovation des équipements énergétiques et une utilisation plus rationnelle de l'énergie.

RÉFÉRENCES

[1] H. Asan and Y. S. Sancaktar, 'Effects of Wall's thermophysical properties on time lag and decrement factor', *Energy Build.*, vol. 28, no. 2, pp. 159–166, Oct. 1998.

[2] C. Mackey and L. Wright, 'Periodic heat flow—composite walls or roofs', *ASHVE Trans.*, vol. 52, no. 283, pp. 194–6, 1946.

[3] C. Luo, B. Moghtaderi, H. Sugo, and A. Page, 'Time lags and decrement factors under air-conditioned and free-floating conditions for multi-layer materials', in *Proceedings of the Building Simulation 2007 Conference, Beijing, China*, 2007, pp. 95–100.

[4] R. Yumrutaş, Ö. Kaşka, and E. Yıldırım, 'Estimation of total equivalent temperature difference values for multilayer walls and flat roofs by using periodic solution', *Build. Environ.*, vol. 42, no. 5, pp. 1878–1885, 2007.

[5] N. C. Balaji, M. Mani, and B. V. Venkatarama Reddy, 'Thermal performance of the building walls', in *Building Simulation Application 2013, 1st IBPSA Italy Conference*, 2013, pp. 151–60.

[6] J. Danckaert, *L'isolation thermique industrielle*, 2. éd, Augm. Paris: Technique et documentation, 1981.

[7] D. W. Peaceman and H. H. Rachford, Jr., 'The Numerical Solution of Parabolic and Elliptic Differential Equations', *J. Soc. Ind. Appl. Math.*, vol. 3, no. 1, pp. 28–41, Mar. 1955.

[8] D. Potter, 'Computational physics', 1973.

[9] EN 15026, *Hygrothermal performance of building components and building elements–assessment of moisture transfer by numerical simulation*. International Organization for Standardization Geneva, 2007.

[10] A. TenWolde, 'ASHRAE Standard 160P–criteria for moisture control design analysis in buildings', 2008.

[11] H. T. Ceylan and G. Myers, 'Long-time solutions to heat-conduction transients with time-dependent inputs', *J. Heat Transf.*, vol. 102, no. 1, pp. 115–120, 1980.

[12] K. Ouyang and F. Haghighat, 'A procedure for calculating thermal response factors of multi-layer walls—state space method', *Build. Environ.*, vol. 26, no. 2, pp. 173–177, 1991.

[13] J. E. Seem, 'Modeling of heat transfer in buildings', Wisconsin Univ., Madison (USA), 1987.

[14] M. S. Owen and H. E. Kennedy, 'ASHRAE handbook: fundamentals', *SI Ed. ASHRAE*, 2009.

[15] G. N. Walton, 'Thermal analysis research program reference manual', *Natl. Bur. Stand. March*, 1983.

[16] G. Clark and C. Allen, 'The estimation of atmospheric radiation for clear and cloudy skies', in *Proc. 2nd National Passive Solar Conference (AS/ISES)*, 1978, pp. 675–678.

[17] H. C. Hottel and A. F. Sarofim, *Radiative transfer*. McGraw-Hill, 1967.

Conclusions générales et perspectives

CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES

Les objectifs des travaux de thèse étaient d'étudier les propriétés thermophysiques de *blankets* aérogels de silice synthétisés par voie alkoxyde et séchés par ondes électromagnétiques. L'innovation de ce matériau provient de son mode de séchage ambiant novateur, et de l'utilisation d'un mat de fibres de verre aiguilleté pour renforcer mécaniquement le matériau. À notre connaissance, aucune étude n'avait été faite sur la caractérisation d'un tel matériau. Le chapitre II de caractérisation répond à ce manque de la littérature en analysant les propriétés texturales, thermiques, hydriques et mécaniques des *blankets* aérogels étudiés. Ces propriétés ont ensuite été comparées avec ce que l'on attend d'un isolant thermique dans le secteur du bâtiment.

Le chapitre III traite des transferts thermiques dans les *blankets* aérogels de silice. Les modèles de la littérature se limitent au cas de l'aérogel de silice natif, mais trop peu d'études s'intéressent au cas du *blanket*, qui est pourtant l'isolant à base d'aérogel le plus prometteur pour une utilisation dans le bâtiment. De plus, les phénomènes de couplages thermiques entre la phase solide et la phase gazeuse récemment mis en évidence ont montré l'incapacité des modèles usuels pour décrire le transfert de chaleur dans ces matériaux. Le chapitre III propose des modèles de conductivité thermique effective des *blankets* aérogels, en prenant en compte les phénomènes de couplage thermique et l'influence des fibres et des fissures du matériau.

Dans le chapitre IV, la caractérisation ne se fait plus à l'échelle du matériau, mais à l'échelle d'un système isolant intégrant le *blanket* aérogel. Le système isolant est placé dans une cellule test, et sa caractérisation est effectuée en conditions climatiques réelles. L'accent du chapitre est mis sur l'utilisation de méthodes de caractérisations *in situ* alternatives. À ce jour, la méthode « *average* » fait office de référence et elle est la seule méthode normalisée. L'identification des paramètres thermiques du système d'isolation est faite en utilisant des méthodes dynamiques et des modèles de transfert thermique en régime transitoire. L'utilisation de ces méthodes dynamiques a permis d'estimer le coefficient de transmission thermique du système isolant avec une meilleure précision qu'avec la méthode « *average* », en un temps plus réduit. La grande flexibilité de ces méthodes a également permis de construire des modèles plus détaillés de notre paroi, et d'identifier d'autres paramètres physiques tels que la capacité thermique effective ou l'absorptance solaire de la paroi. Les résultats de caractérisation *in situ* ont permis de montrer l'utilité d'un tel système isolant et de valider les propriétés du système d'isolation global.

Le chapitre V porte sur les simulations numériques de bâtiments isolés par le système isolant à base de *blanket* aérogel. On a montré que la rénovation de bâtiments existants (tertiaire ou logement) réduisait considérablement les déperditions thermiques à travers l'enveloppe. L'utilisation de tels super-isolants pour les bâtiments neufs permettrait d'atteindre les niveaux de consommation drastiques exigés par les futures réglementations thermiques, avec des épaisseurs d'isolant relativement faibles.

Contributions et résultats principaux

Caractérisation du matériau

Les résultats de caractérisation ont montré un matériau avec de très bonnes propriétés thermohydriques. Les *blankets* aérogels étudiés ont une conductivité thermique λ = 15-18 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, comparables aux *blankets* aérogels de référence Spaceloft et Thermal Wrap, produits respectivement par Aspen et Cabot. L'utilisation du séchage électromagnétique lors de la fabrication n'a que très peu d'effet sur les propriétés morphologiques et la conductivité thermique finale du matériau. Grâce à ce nouveau séchage électromagnétique, les *blankets* aérogels produits deviennent de sérieux concurrents des *blankets* aérogels issus du traditionnel – mais coûteux – séchage supercritique. Les résultats de caractérisation hygrique, quant à eux, ont montré que les *blankets* aérogels étudiés étaient très hydrophobes. On retiendra comme résultats une teneur en eau massique $u < 3$ % pour 90 % d'humidité relative et un angle de contact avec une goutte d'eau $\theta > 130$ °. L'humidité impacte également la conductivité thermique avec une augmentation de cette dernière d'environ 35 % pour une humidité relative environnante de 90 %. En marge d'une étude plus approfondie de l'effet de l'humidité sur les *blankets* aérogels, une étude de vieillissement hygrique a été amorcée. Cet axe de recherche reste encore relativement nouveau et peu étudié, mais devrait prendre de l'ampleur dans les années à venir tant il est important. Les premiers résultats de caractérisation hygrique ont montré qu'à long terme, l'humidité relative modifiait la morphologie du matériau et par conséquent la conductivité thermique. Soumis 1 an à une humidité relative de 98 %, les *blankets* aérogels voient leur conductivité thermique augmenter de 2 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ de manière irréversible et leur taille moyenne de mésopore augmenter de 15 nm. Finalement, les résultats de caractérisation mécanique des *blankets* en flexion, traction et compression ont montré l'utilité du mat de fibres aiguilleté. Le mat de fibres aiguilleté améliore considérablement les propriétés mécaniques du matériau, en comparaison avec l'aérogel de silice natif ou bien un *blanket* aérogel ayant un mat de fibres non-tissé. On retiendra pour le *blanket* aérogel NGF une contrainte à 10 % de déformation $\sigma_{10} > 57$ kPa, un retour élastique $Re > 90$ %, une résistance en flexion $\sigma_f > 490$ kPa et une résistance en traction $\sigma_t > 9$ kPa.

Modèles de transfert thermique dans les *blankets* aérogels

Les modèles de transfert thermique dans les *blankets* aérogels sont basés sur les modèles de transfert thermique des aérogels de silice de la littérature. Cependant, les modèles proposés prennent en compte le phénomène de couplage thermique solide/gaz en faisant intervenir un facteur de couplage. Le modèle de conduction gazeuse proposé considère une distribution poreuse à deux tailles de pores – voire trois –, plus proche de la réalité physique du *blanket*, contrairement au modèle unimodal couramment rencontré. On distingue ainsi, les mésopores de la phase aérogel des fissures macroscopiques entre les fibres et l'aérogel. Les résultats ont par ailleurs montré que la quantité de fissures pouvait augmenter significativement la conductivité

thermique effective (jusqu'à +4 $mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ pour 15 % de fissures). Il convient donc de les minimiser lors de la synthèse, du transport et de la manipulation.

En conjuguant les résultats de conductivité thermique sous vide partiel du *blanket* avec le modèle de conduction gazeuse bi ou trimodal, nous avons pu identifier les différentes tailles de pores majoritaires dans le *blanket* ainsi que le facteur de couplage par méthode inverse. Cette nouvelle méthode constitue une nouvelle façon de caractériser la distribution poreuse, et permet d'identifier un paramètre inconnu : le facteur de couplage.

Enfin, on a modélisé l'influence des fibres sur la conductivité thermique effective du blanket à l'aide de modèles séries/parallèles. Les résultats montrent que la quantité de fibres et leur conductivité thermique jouent un rôle mineur sur la conductivité thermique effective du *blanket* – tant que l'on reste dans les proportions usuellement rencontrées *i.e* < 5 %vol –, alors que la proportion de fibres parallèles au flux de chaleur avait un rôle assez important. Cette proportion de fibres est également responsable de l'augmentation des propriétés de cohésion du *blanket*. On fait alors face à un compromis mécanique/thermique des propriétés du *blanket*, caractérisé par la quantité de fibres dans le sens transverse.

Caractérisation du système isolant en cellule test

Le système d'isolation a été caractérisé par mesures *in situ* en cellule test. Les mesures ont été effectuées sans interruption depuis décembre 2016. Le coefficient de transmission thermique du mur test est passé de $U = 0{,}67\ W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$ avant réhabilitation à $U = 0{,}33\ W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$ après la pose du système. La résistance thermique du système d'isolation est donc $R = 1{,}5\ m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$ pour 2,5 cm de *blanket* NGF. La conductivité thermique qui en découle pour le *blanket* aérogel est donc $\lambda = 16{,}2\ mW \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, comme celle mesurée en laboratoire. Le système d'isolation tel qu'installé dans la cellule test parait donc prometteur pour la rénovation de bâtiments peu isolés. Cependant, pour l'isolation de bâtiments neufs, l'épaisseur de *blanket* aérogel est trop faible pour obtenir le label BBC ou BEPOS. Il est nécessaire d'augmenter l'épaisseur de *blanket* aérogel du système isolant, soit en synthétisant directement des matériaux plus épais, soit en superposant plusieurs couches de *blankets* aérogels.

L'utilisation des méthodes dynamiques pour la caractérisation *in situ* des propriétés du système a permis de démontrer leurs atouts. Pour le cas de notre mur test, celles-ci donnent des résultats plus précis qu'avec la méthode « *average* » et plus justes. En particulier, la méthode *average* a tendance à sous-estimer le *U-value* si l'on ne prend pas de précautions vis-à-vis du rayonnement solaire. Les méthodes dynamiques quant à elles, peuvent prendre en compte le rayonnement solaire en donnée d'entrée et calculer le coefficient de transmission solaire de la paroi. En modélisant la paroi *via* un circuit RC adéquat, d'autres paramètres du mur ont été identifiés tels que la capacité thermique effective, le coefficient d'échange thermique de la surface extérieur, et l'absorptance de la surface extérieure. Enfin, l'avantage incontestable des méthodes dynamiques réside dans la faible quantité de données nécessaires pour calculer les

paramètres physiques du mur. Dans le cas de notre mur test, 10 jours de mesures sont suffisants contre au moins 1 mois pour les méthodes en régime permanent.

Simulations numériques de bâtiments

Les résultats des simulations numériques ont montré que l'ajout de 2,5 cm d'isolant NGF divisait par 100 le facteur d'amortissement d'une paroi, permettant d'obtenir une température intérieure quasi constante. Les meilleurs résultats sont obtenus avec une isolation par l'extérieur. Une étude de rentabilité de l'isolant a permis de calculer l'épaisseur économique du matériau – celle qui minimise à la fois les coûts d'exploitation du bâtiment sur une période donnée et le coût de l'isolant –. Pour une période de retour sur investissement de 10 ans et un gradient de température moyen de 10 °C, l'épaisseur économique vaut $e = 4$ cm. Il a été montré que l'avantage économique des *blankets* aérogels réside dans leur faible épaisseur, et leur capacité à minimiser la perte de coût foncier engendré par une isolation par l'intérieur. En considérant le coût actuel de fabrication de ce *blanket* aérogel, les rénovations économiquement intéressantes sont celles où le prix de l'immobilier est supérieur à 4 600 € $\cdot$ m^{-2}. Les résultats de simulation hygrique des trois systèmes d'isolation investigués (intérieur, extérieur et toiture) montrent que ces systèmes peuvent modifier l'équilibre hygrique des parois. Ils montrent aussi qu'il est recommandé d'utiliser un pare-vapeur sur la face intérieure pour une isolation par l'intérieur, et qu'il est préférable d'avoir des couches extérieures qui respirent – *i.e.* à faible perméabilité à l'air – pour l'isolation par l'extérieur et l'isolation de toiture. Ce dernier nécessite tout de même une couche d'étanchéité à l'eau en cas de pluie. Les simulations de bâtiment à l'échelle global ont montré que la rénovation de bâtiments non isolés avec 5 cm d'isolant NGF réduisait les besoins en chauffage de 50 %, et les besoins en refroidissement de 30 % partout en Europe. Enfin, le confort d'été peut être amélioré de 1 °C en isolant par l'extérieur, mais une bonne ventilation nocturne est indispensable pour atteindre des niveaux de confort acceptables pour les climats chauds.

Perspectives

Développement industriel

Dans le cadre du projet Homeskin, les *blankets* aérogels produits avaient une épaisseur maximale de 2,5 cm, avec des dimensions de 40 cm x 30 cm. Afin d'être plus en accord avec les standards du bâtiment et les futures réglementations thermiques, il semble indispensable de développer des *blankets* avec une épaisseur plus grande et des panneaux de plus grandes dimensions. Se faire une place sur le marché de l'isolation thermique passe aussi par une industrialisation à plus grande échelle du matériau, ainsi que par une analyse détaillée de son cycle de vie.

Caractérisation du matériau

L'un des points faibles des *blankets* aérogels est l'émanation de poussière lorsque le matériau est sollicité mécaniquement. On a vu les problèmes que cela engendre lors de la mise en forme du matériau. Il serait intéressant pour de futurs axes de recherche de travailler sur des techniques de fabrication minimisant le caractère « générateur de poussiére » du *blanket*. Pour aller dans ce sens, il faudrait mettre en place des méthodes de caractérisation du caractère poussiéreux du *blanket*, et à terme avoir des essais normalisés.

Il serait également pertinent d'approfondir les recherches sur le vieillissement thermohygrique des *blankets* aérogels. La littérature reste encore peu fournie sur ces problématiques, notamment sur les phénomènes en jeu et l'impact sur la modification texturale et structurale du matériau et les conséquences sur la conductivité solide et gazeuse. Dans la thèse, l'étude de vieillissement hygrique a duré un an, mais il serait préférable de poursuivre ce type d'essais sur plusieurs années consécutives.

Modèles de transfert thermique dans les *blankets* aérogels

Le phénomène de couplage thermique dans l'aérogel de silice n'est acquis que depuis récemment. Cependant, la nature physique profonde du phénomène reste assez mal comprise. On trouve dans la littérature deux ou trois modèles analytiques de ce couplage, mais aucun d'entre eux n'est capable de parfaitement décrire le phénomène de couplage. Un axe de recherche à considérer serait d'approfondir les modèles de couplage thermique de l'aérogel, de mettre en évidence expérimentalement ce couplage et de mieux en saisir le sens physique.

Caractérisation du système isolant en cellule test

On a mis en évidence l'intérêt des méthodes dynamiques d'estimation de paramètres en modélisant le mur avec un circuit RC. Les modèles employés dans ce travail de thèse restent relativement simples, mais il serait intéressant de complexifier ces modèles pour décrire plus finement le transfert thermique dans les parois en utilisant toutes les mesures enregistrées sur

la cellule test et disponibles. On pourrait par exemple déterminer le coefficient d'échange thermique extérieur en fonction de la vitesse de vent, décrire les échanges convectifs et radiatifs dans la lame d'air ou intégrer au modèle le rayonnement grandes longueurs d'onde sur la surface extérieure. Pour ce dernier, l'installation d'un pyrgéomètre sur la surface extérieure du mur test est nécessaire.

Simulations numériques de bâtiments

Dans notre étude, les simulations numériques ont été effectuées uniquement pour des climats européens. Il pourrait être intéressant d'étendre ces simulations à d'autres climats (tropical, chaud et sec). On pourrait également étudier l'isolation d'autres types de murs structurants et d'autres configurations de parois. Enfin, nos simulations portaient sur des cas d'applications précis (logement en habitat collectif et bureaux), il serait intéressant d'étudier des bâtiments ayant des scénarios d'occupation totalement différents (hôtel, commerce, restaurant).

Annexes

Table des matières

Annexe 1 : Complément des caractérisations en laboratoire....327

Caractérisation mécanique....327
Stabilité dimensionnelle....328
Résistance au feu....328
Poudrage....329

Annexe 2 : Propriétés du système Trocellen....330

Propriétés thermophysiques du système Trocellen....330
Propriétés acoustiques du système Trocellen....331

Annexe 3 : Caractéristique de la cellule test....332

Plan à la construction....332
Propriétés thermo-physiques des parois de la cellule test (septembre 2018)....332

Annexe 4 : Résultats de mesure d'infiltration d'air dans la cellule test....334
Annexe 5 : Introduction aux séries temporelles....336
Annexe 6: Méthodes d'estimation de paramètres....337

Avec LORD....337
Avec Ctsm-R....339

Annexe 7 : Validation des modèles 'state-space' modélisés sous Ctsm-R....340

Modèle 2R1C (*1-state*)....340
Modèle 3R2C (2-states)....341

Annexe 8 : Systèmes d'isolation ETICS et FLAG....342

Système ETICS....342
Système FLAG....343

Annexe 9 : Scénarios utilisés pour les simulations avec Energy Plus....344

Bâtiment tertiaire....344
Appartement....344

Annexe 1 : Complément des caractérisations en laboratoire

L'annexe 1 fournit un complément sur la caractérisation des *blankets* aérogels étudiés au cours de la thèse. Les caractérisations ont été faites par l'Université de Stuttgart (*Materials Testing Institute*) et concernent un complément des caractérisations mécaniques, la stabilité dimensionnelle, la résistance au feu, et le poudrage.

Caractérisation mécanique

Test	Échantillon blanket	Paramètre	Méthode	Taille de l'échantillon L x l [mm]	Valeur mesurée	Spécifications d'après EN 13162
Charge ponctuelle (ε=5 mm)	GF	F_P [N]	EN 12430	300 x 300	287	>200 N (PL(5)200)
	NGF_6mm			300 x 300	1573 (entre 1120 et 2280 N)	Chaque valeur >1550 N (PL(5)1550)
Résistance au cisaillement	NGF_6mm	τ [kPa]	DIN EN 12090	200 x 100	45 (entre 20,8 et 66,5 kPa)	>40kPa (SS40)
Résistance à l'écoulement de l'air	GF	AFr [kPa,s/m²]	DIN EN 29053	Φ100	279	>279 kPa,s/m² (AFr279)
	NGF_6mm			Φ100	122 (entre 55 et 207 kPa*s/m²])	>122 kPa.s/m² (AFr122)

Stabilité dimensionnelle

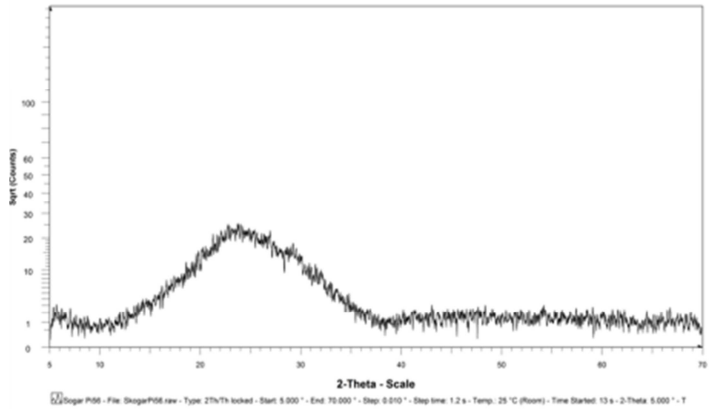
Test	Conditionnement (48 h)	Longueur $\|\Delta\varepsilon\|$ [%]	Largeur $\|\Delta\varepsilon w\|$ [%]	Épaisseur $\|\Delta t\|$ [%]	Spécifications d'après EN 13162
GF	70 °C, 0 %HR	0,27 (0,04 / 0,53 / 0,25)	0,46 (0,69 / 0,28 / 0,42)	-0,24 (0,00 / -0,71 / 0,00)	≤ 1
	70 °C, 90 % HR	0,45 (0,28 / 0,45 / 0,64)	0,55 (0,56 / 0,48 / 0,60)	+0,93 (1,36 / 1,06 / 0,37)	≤ 1
NGF_6mm	70 °C, 90 % RH	0,31 (0,11 / 0,26 / 0,56)	0,30 (0,11 / 0,31 / 0,48)	+0,60 (0,00 / 1,35 / 0,46)	≤ 1

Résistance au feu

	Test		Mousse composite	Blanket GF	Blanket PET	Blanket NGF	Blanket NGF
Épaisseur		mm	10	30	15	7	20
Densité		kg/m³	90	115	120	150	180
Test d'après EN 13501-1							
EN ISO 1182	Test de non-combustion	Δm (%)	19,9	-	-	4,4	-
		ΔT (°C)	248,4	221,5	-	146,8	-
		tf (sec)	93	58	-	65	-
EN ISO 1716	Valeur calorifique	PCS (MJ/kg)	7,7	6.2	-	5,1	2,77
EN 13823	Test SBI	FIGRA (W/s)	-	-	-	0	83,35
		THR (MJ)	-	-	-	0,38	1,98
		SMOGRA (m^2/s^2)	-	-	-	0	0
		TSP (m^2)	-			16,4	21,1
EN ISO 11925-2	Allumabilité	mm	40	30	60	40	-
EN 13820	Contenu organique	%	17,2	9,3	36,8	4,2	3,4
Classe						B-s1, d0	A2-s1, d0

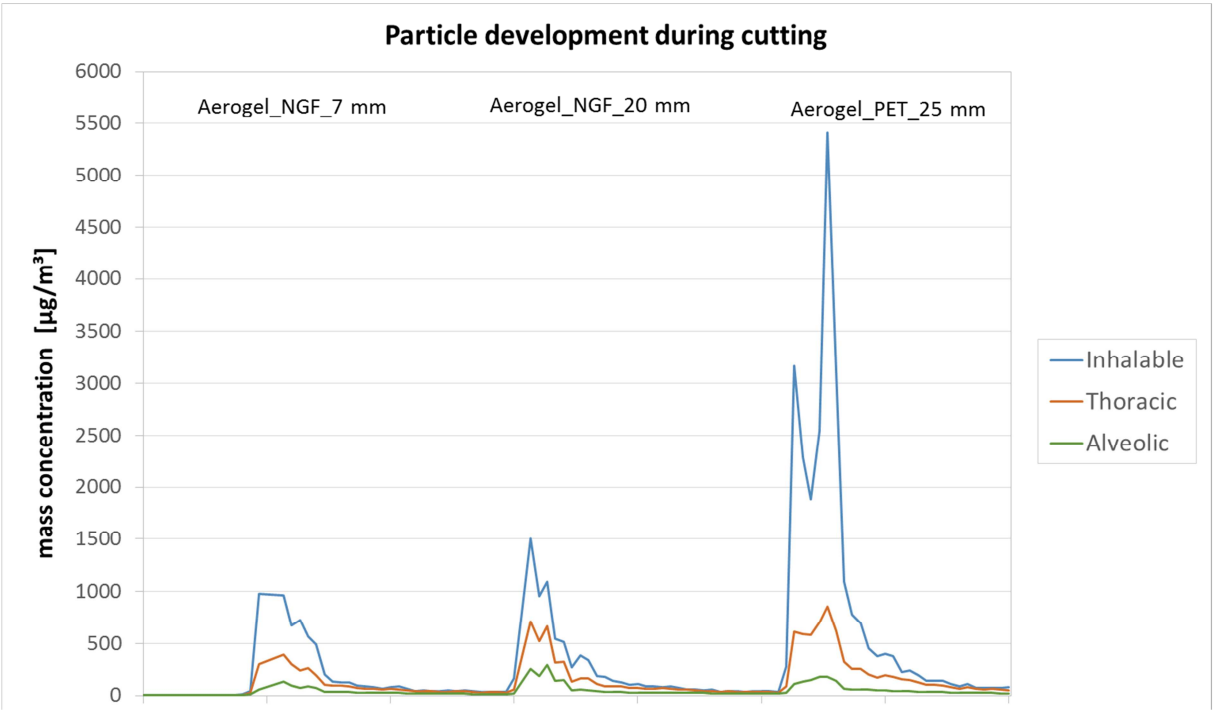
Poudrage

La poudre émise par les *blankets* a été analysée par diffraction aux rayons X. Les résultats sont montrés ci-dessous, la poudre est composée de silice amorphe, non toxique pour la santé.



Essai DRX sur la poudre émise par les *blankets*

L'émission de poudre a été quantifiée pour la manipulation et la découpe des *blankets* aérogels. La manipulation a été simulée par des tests vibratoires, les résultats ont montré une émission de poudre inférieure à 0,01 $mg \cdot m^{-3}$. La découpe a été effectuée avec une scie automatique. Les résultats d'émission de poudre sont présentés ci-dessous.



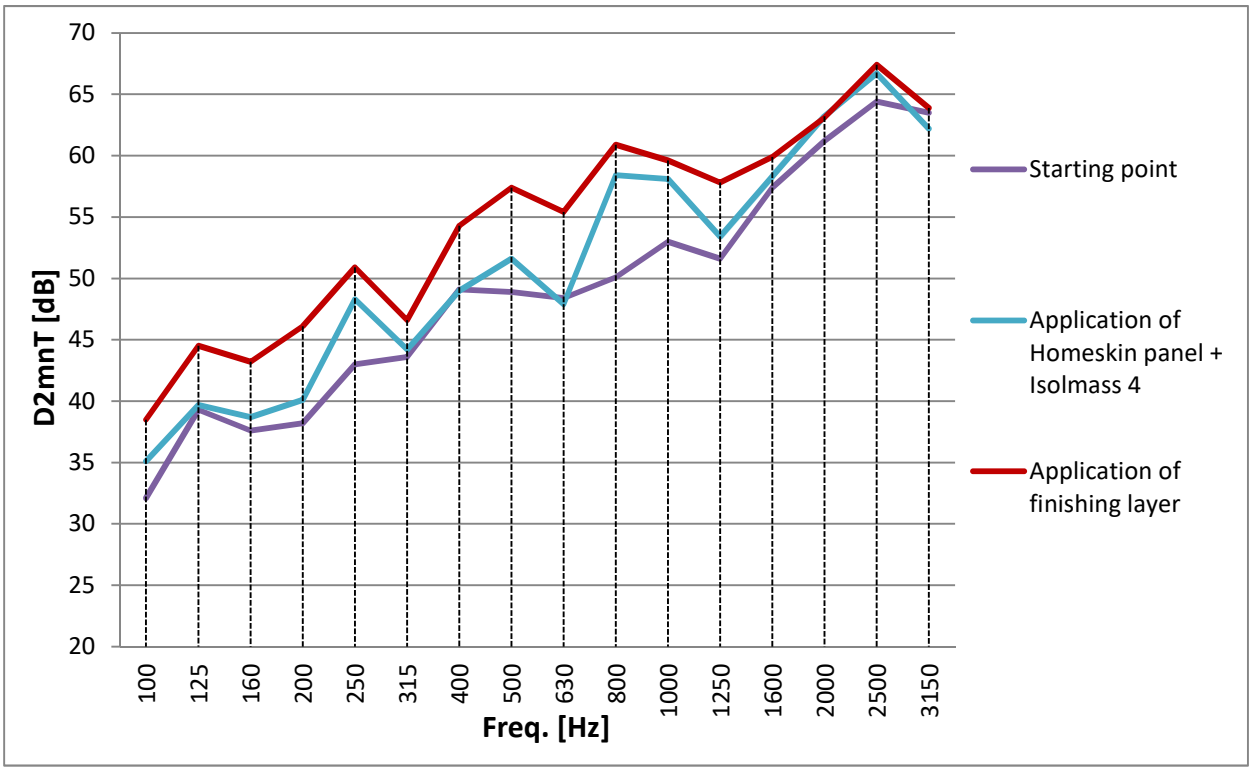
Quantité de poudre émise lors de la découpe des *blankets* aérogels

Annexe 2 : Propriétés du système Trocellen

L'Annexe 2 donne des informations complémentaires sur le système d'isolation Trocellen. Également, les résultats d'essais acoustiques *in situ* de notre cellule test sont présentés.

Propriétés thermophysiques du système Trocellen

Characteristic	Unit of measurement	Value	Standard
Thickness	mm	26-56	EN ISO 1923
Basic weight	kg/m²	4.01-8.8	EN ISO 945
Basic weight with ISOLMASS 4	kg/m²	8.01-12.87	EN ISO 945
Thermal conductivity blanket	W/mK	0.0157, 0.0173	EN 12667
Thermal conductivity TROCELLEN CLASS (PE)	W/mK	0.037	EN 12667
Thermal conductivity ISOLMASS 4	W/mK	0.5871	EN 12667
Vapour resistance µ TROCELLEN CLASS (PE)	-	983.5 (Dry-cup-method 23 °C, 0/50% RH) / 1 093.4 Wet-cup-method 23 °C, 50/93% RH)	ISO 12572
Vapour resistance µ ISOLMASS 4	-	11 646.0 (Dry-cup-method 23 °C, 0/50% RH) / 9 745.0 (Wet-cup-method 23 °C, 50/93% RH)	ISO 12572
Thermal stability TROCELLEN CLASS (PE)	°C	100	EN ISO 2796
Reaction to fire	class	C-s2,d0	En 13501-1

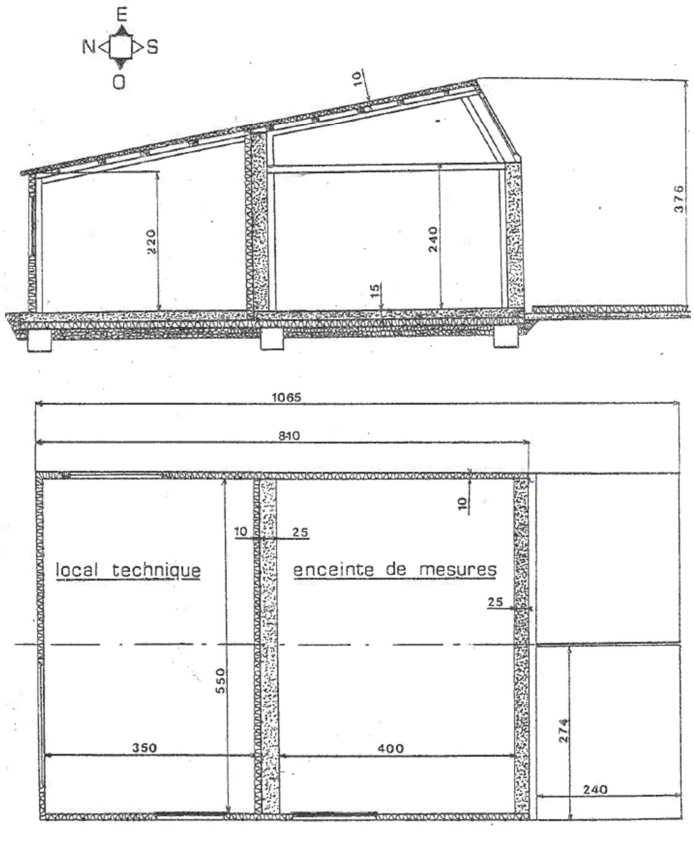


Mesure *in situ* de l'isolement acoustique normalisé pour chaque fréquence (voir Norme ISO 16283) dans la cellule test, avant (violet) et après la mise en place du système Trocellen.

Le système complet de Trocellen améliore l'isolation acoustique de 7 dB, ce qui correspond à une réduction de la puissance sonore d'un quart.

Annexe 3 : Caractéristique de la cellule test

Plan à la construction



Propriétés thermo-physiques des parois de la cellule test

(septembre 2018)

Mur	**Matériau ext -> int**	**Épaiseur (cm)**	**Conductivité thermique ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$)**	**Densité ($kg \cdot m^{-3}$)**	**Chaleur spécifique ($J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$)**
Mur sud (côté est)	Enduit aérogel	4	0,0267	150	990
	Béton	25	2,1	2400	800
	PE	0,3	0,037	28	800
	Blanket aérogel NGF	2,5	0,0165	200	800
	PE	0,3	0,037	28	800
	IsolMass (Pare-vapeur)	0,2	0,587	2000	x
Mur sud (côté ouest)	Granule aérogel de silice	4	0,018	100	
	MCP[15]	5	0,182	900	1800

[15] Matériau à Changement de Phase. Les propriétés décrites dans le tableau peuvent varier selon la phase du MCP

Mur est et Mur ouest	Enduit Wash Perle	1	0,46	1500	1340
	Laine de verre	16	0,041	12	840
	Agglomeré bois	1,9	0,18	780	1700
	Polystyrène expansé	8	0,04	25	1380
	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800
Cloison cellule est/ouest	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800
	Laine de verre	16	0,041	12	840
	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800
	Polystyrène expansé	2	0,04	25	1380
	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800
Cloison Cellule/acquisition	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800
	Laine de verre	16	0,041	12	840
	Béton	25	2,1	2400	800
	Mousse phénol-formol	7,7	0,032	32	1255
	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800
Mur Nord	Enduit Wash Perle	1	0,46	1500	1340
	Polystyrène expansé	8	0,04	25	1380
	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800
Sol	Polystyrène expansé	8	0,04	25	1380
	Béton	15	2,1	2400	800
	Carrelage	1,5			
Toiture nord	Schingle	0,3	0,74	2110	850
	Agglomeré bois	1,2	0,18	780	1700
	Mousse phénol-formol	6	0,032	32	1255
	Agglomeré bois	1,2	0,18	780	1700
	Laine de verre	16	0,041	12	840
	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800
Toiture sud	Schingle	0,3	0,74	2110	850
	Agglomeré bois	1,2	0,18	780	1700
	Laine de verre	16	0,041	12	840
	Plâtre BA13	1,3	0,32	790	800

Annexe 4 : Résultats de mesure d'infiltration d'air dans la cellule test

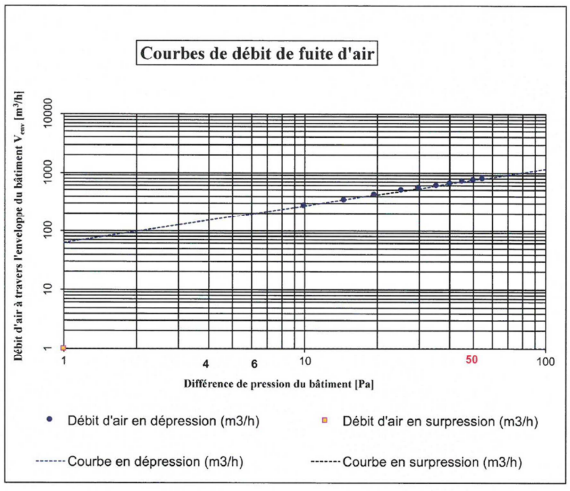
SYMBOLES ET UNITES

SYMBOLE	GRANDEUR	UNITE
V	Volume du local chauffé	m^3
$A_{t\text{-bât}}$	Surfaces de parois déperditives, hors plancher bas	m^2
SHON	Surface hors œuvre nette	m^2
SHAB	Surface habitable	m^2
SU	Surface utile (en tertiaire)	m^2
A_L	Surface équivalente de fuite, représente l'ensemble des fuites considérées ramené à une seule surface	m^2
n_{50}	Taux de renouvellement d'air sous 50 Pascal	h^{-1}
$Q_{4\ Pa\text{-}surf}$	Perméabilité à l'air sous 4 Pascal	$m^3/(h.m^2)$
C_{env}	Coefficient de débit d'air à travers l'enveloppe du bâtiment	$m^3/(h.Pa^n)$
C_L	Coefficient de fuite d'air	$m^3/(h.Pa^n)$
n	Exposant de fuite d'air	-

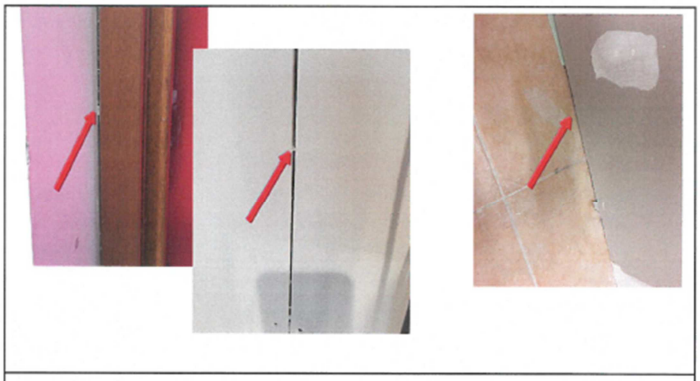
EXPRESSION DES RESULTATS

	DEPRESSURISATION			PRESSURISATION		
	Valeurs	Intervalle de confiance à 95 %		Valeurs	Intervalle de confiance à 95 %	
		Mini	Maxi		Mini	Maxi
C_L ($m^3/(h.Pa^n)$)	62,97	60,10	65,99			
C_{env} ($m^3/(h.Pa^n)$)	62,69	59,82	65,69			
Exposant n	0,63	0,62	0,65			
Coefficient de corrélation r	0,9996	-	-		-	-
$Q_{4\ Pa\text{-}surf}$ ($m^3/(h.m^2)$)	2,07	1,95	2,19			
incertitude $Q_{4\ Pa\text{-}surf}$ (%)	5,73					
V_4 (m^3/h)	151,83	147,56	156,09			
incertitude V_4 (%)	2,81					
n_{50} (h^{-1})	13,24	12,56	13,91			
incertitude n_{50} (%)	5,11					
V_{50} (m^3/h)	754,52	746,53	762,50			
incertitude V_{50} (%)	1,06					

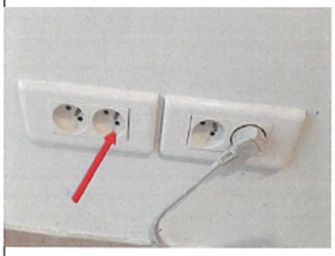
COURBES DE DEBITS DE FUITE D'AIR



ICONOGRAPHIE



Circulations d'air dans des doublages intérieurs.



Infiltrations au niveau de prise(s) électrique(s), interrupteur(s) et autres unités électriques terminales, encastrés sur parois extérieures ou locaux non chauffés

Infiltrations au niveau de percements non rebouchés. Infiltrations par les traversées de murs des gaines ou fils électriques.

Infiltrations par les traversées de murs des réseaux fluide frigorigène de la PAC.

Infiltrations au niveau de percements non rebouchés. **Infiltrations par les traversées de murs des gaines ou fils électriques.**

Annexe 5 : Introduction aux séries temporelles

Let us introduce some of the most important concepts of time series analysis by considering an example where we look for simple models for predicting diurnal measurements of heat consumption. In the following, let Φ_t denote the heat consumption (the heat load) at time (day) t. The first naive guess would be to say that the heat consumption the next day is the same as today. Hence, the predictor is:

$$\widehat{\Phi}_{t+1|t} = \Phi_t \tag{A5.1}$$

This predictor is called the naive predictor or the persistent predictor. The syntax used is short for a prediction (or estimate) of c given the observations Φ_t , Φ_{t-1}, …

Next day, i.e , at time t+1, the actual heat consumption is Φ_{t+1}. This means that the prediction error or innovation may be computed as:

$$\epsilon_{t+1} = \Phi_{t+1} - \widehat{\Phi}_{t+1|t} \tag{A5.2}$$

By combining Equations (A5.1) and (A5.2) we obtain the stochastic model for the heat load:

$$\Phi_t = \Phi_{t-1} + \epsilon_t \tag{A5.3}$$

If ϵ_t is a sequence of uncorrelated zero mean random variables (white noise), the process (A5.3) is called a random walk. The random walk model is very often seen in finance and econometrics. For this model the optimal predictor is the naive predictor (A5.1). However, it is obvious to try to consider the more general model:

$$\Phi_t = \alpha\Phi_{t-1} + \epsilon_t \tag{A5.4}$$

This is called the AR(1) model (the autoregressive first order model). Notice that the random walk is obtained for $\alpha = 1$.

By introducing the backward shift operator B by:

$$B^k\Phi_t = \Phi_{t-k} \tag{A5.5}$$

The model can be written in a more compact form. The AR(1) model can be written as :

$$\Phi_t(1 - \alpha B) = \epsilon_t \tag{A5.6}$$

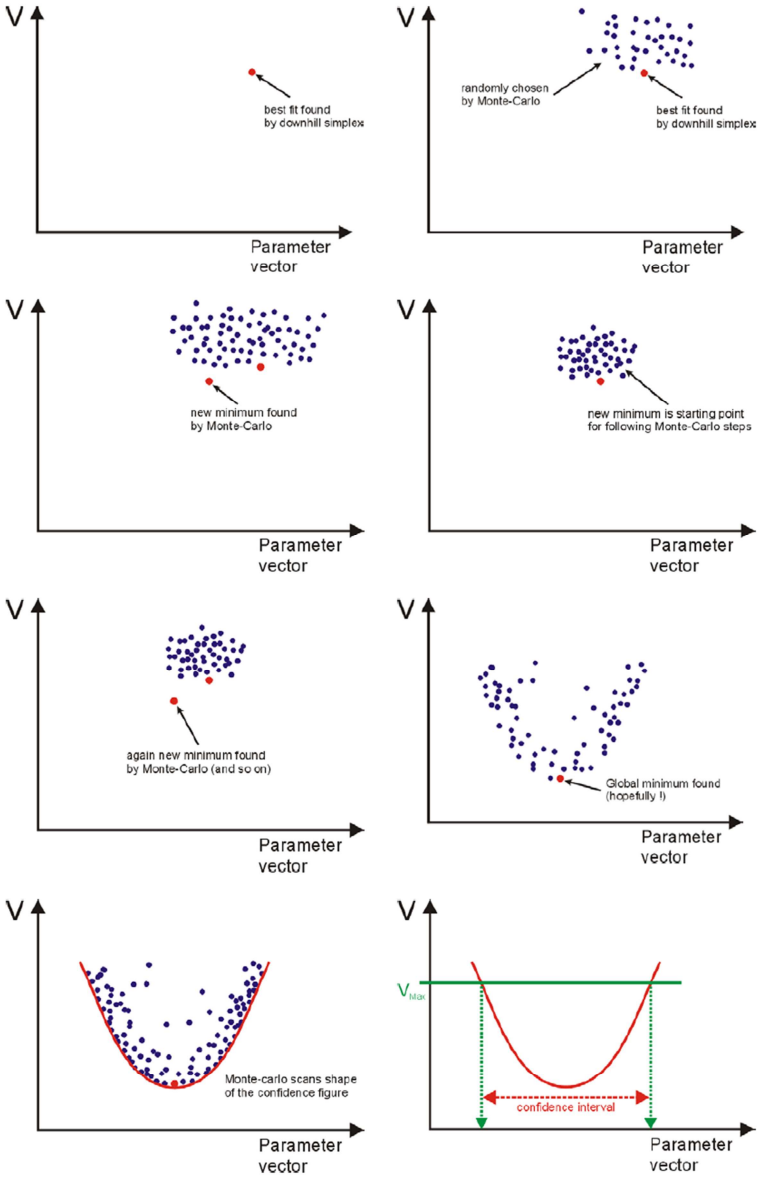
Given a time series of observed heat load, Φ_1, Φ_2, … , Φ_N, the model structure can be identified, and, for a given model, the time series can be used for parameter estimation.

The model identification is most often based on the estimated autocorrelation function. The autocorrelation function shows how the heat load now is correlated to previous values for the heat load; more specifically the autocorrelation in lag k is simply the correlation between Φ_t and Φ_{t-k} for stationary processes.

Annexe 6: Méthodes d'estimation de paramètres

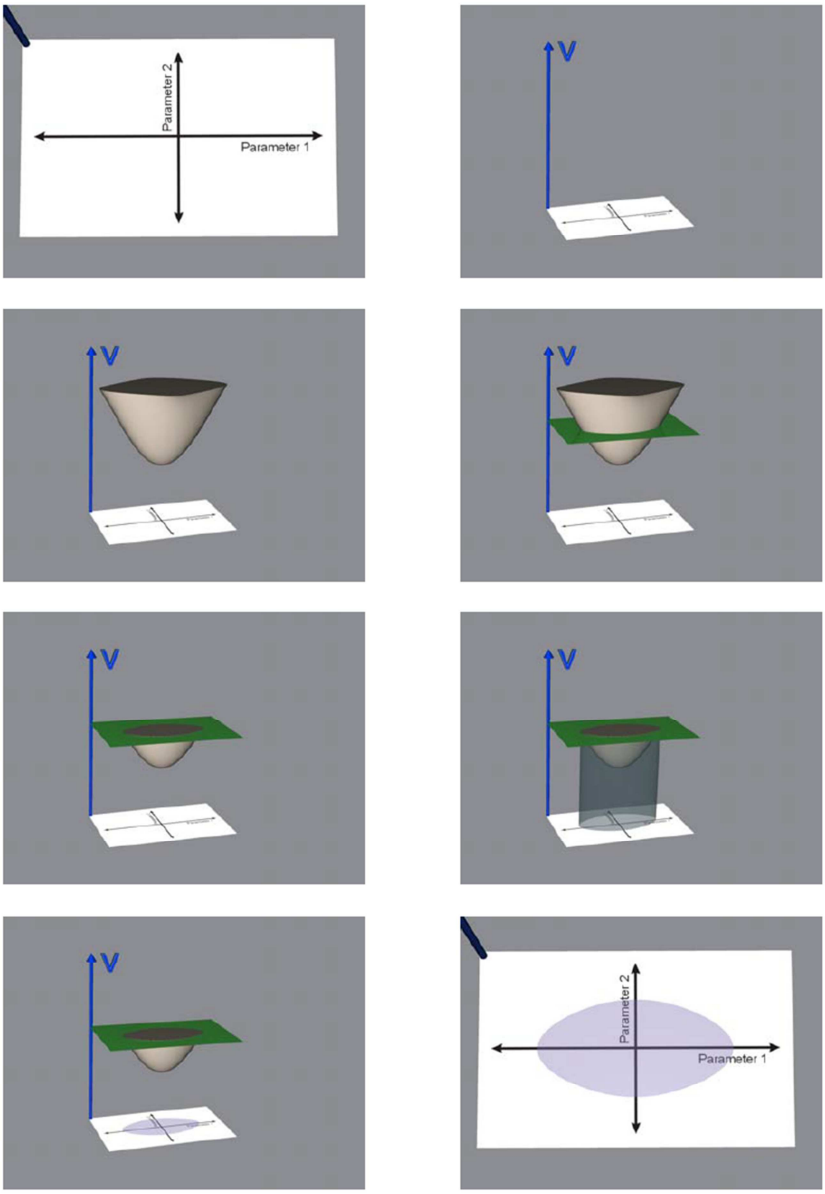
Avec LORD

Avec LORD la fonction objective V est minimisée en utilisant une combinaison des méthodes Downhill Simplex et Monte-Carlo. La première est une méthode d'optimisation linéaire robuste qui permet de trouver grossièrement le minimum de la fonction objective. La procédure Monté-Carlo scanne des valeurs adjacentes de la fonction objective du premier minimum jusqu'à ce qu'un nouveau minimum soit trouvé.



Minimisation de la fonction objective avec LORD

La projection de la fonction objective V à la position $V = V_{max}$ sur l'espace des paramètres définit l'intervalle de confiance. L'exemple ci-dessous montre la projection dans le cas de deux paramètres à optimiser.



Intervalle de confiance des paramètres à estimer avec LORD

Avec Ctsm-R

L'estimation des paramètres avec Ctsm-R est effectuée avec la méthode du maximum de vraisemblance. À partir d'un modèle donné, la méthode du maximum de vraisemblance permet d'identifier les paramètres inconnus en trouvant le paramètre θ qui maximise la fonction de vraisemblance d'une séquence de mesures $y_0, y_1, \dots, y_k, \dots, y_N$ de la variable de sortie (par exemple la densité de flux thermique). Avec la notation $\boldsymbol{y_N} = [y_0, y_1, \dots, y_k, \dots, y_N]$, la fonction vraisemblance se définit comme le produit des densités de probabilité suivantes :

$$L(\theta; \boldsymbol{y_N}) = p(\boldsymbol{y_N}|\theta) \tag{A6.1}$$

ou de manière équivalente :

$$L(\theta, \boldsymbol{y_N}) = (\prod_{k=1}^{N} p(y_k|\boldsymbol{y_{k-1}}, \theta))p(y_0|\,\theta) \tag{A6.2}$$

où la règle $P(A \cap B) = P(A|B)P(B)$ a été appliqué pour former un produit de probabilités conditionnelles

En introduisant les moments d'ordre 1 (moyenne) et 2 (matrice de variance-covariance) de la variable de sortie :

$$\hat{y}_{k|k-1} = E(y_k|\boldsymbol{y_{k-1}}, \theta) \tag{A6.3}$$

$$R_{k|k-1} = V(y_k|\boldsymbol{y_{k-1}}, \theta) \tag{A6.4}$$

et l'erreur de prédiction

$$\epsilon_k = y_k - \hat{y}_{k|k-1} \tag{A6.5}$$

et en supposant que les densités de probabilité conditionnelle sont gaussiennes, la fonction vraisemblance peut s'écrire :

$$L(\theta, \boldsymbol{y_N}) = (\prod_{k=1}^{N} \frac{\exp\left(-\frac{1}{2}\epsilon_k^T R_{k|k-1}^{-1}\epsilon_k\right)}{\sqrt{\det(R_{k|k-1})(\sqrt{2\pi})^l}})p(y_0|\,\theta) \tag{A6.6}$$

ϵ_k, $\hat{y}_{k|k-1}$ et $R_{k|k-1}$ où la règle $P(A \cap B) = P(A|B)P(B)$ a été appliqué pour former un produit de probabilités conditionnelles

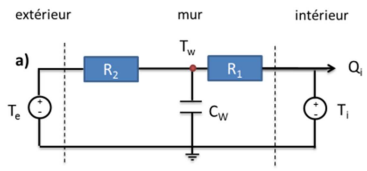
En introduisant les moments d'ordre 1 (moyenne) et 2 (matrice de variance-covariance) de la variable de sortie :

$$\hat{\theta} = \arg\min_{\theta}(-\ln(L(\theta, \boldsymbol{y_N}|y_0)] \tag{A6.7}$$

Annexe 7 : Validation des modèles 'state-space' modélisés sous Ctsm-R

L'Annexe 7 présente les résultats de validation des modèles 2R1C et 3R2C pour une estimation de paramètres sur les séries 5b-6b-7b.

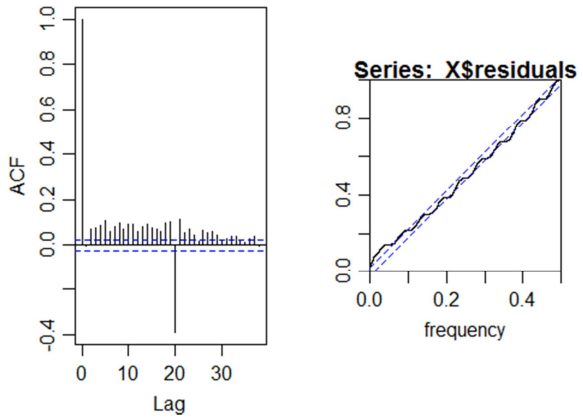
Modèle 2R1C (*1-state*)

	p(>|t|)	dV/dPar	dP/dPar
C_W	0	$-4{,}8.10^{-5}$	$1{,}4.10^{-5}$
R_1	0	$-6{,}5.10^{-5}$	$4.\ 10^{-5}$
R_2	0	$-7{,}7.10^{-5}$	$1{,}9.10^{-5}$
α	0	$3{,}4.10^{-5}$	$8.\ 10^{-6}$
h_{se}	0	$-5{,}2.10^{-6}$	$-8.\ 10^{-6}$
T_W	0	$-1{,}4.10^{-5}$	0

p-valeur, dérivée de la fonction objective et de la fonction pénalité par rapport aux paramètres.

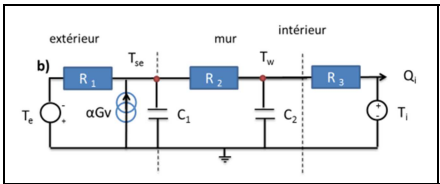
Paramètre	R_1	R_2	α	h_{se}	T_W
C_W	0,04	-0,06	0,11	0,17	-0,08
R_1		0	0,13	0,11	-0,87
R_2			-0,02	-0,03	0,02
α				0,16	-0,16
h_{se}					-0,15

Matrice de corrélations entre les paramètres



(gauche) Fonction d'autocorrélation (domaine temporel), (droite) Periodogramme cumulée (domaine fréquentiel), les pointillés bleus délimitent l'intervalle de confiance à 95 %

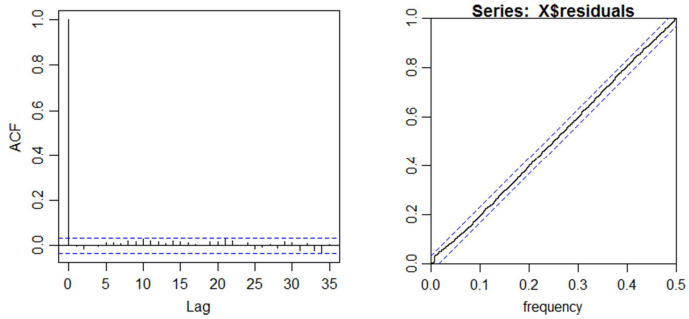
Modèle 3R2C (2-states)

	p(>|t|)	dV/dPar	dP/dPar
C_1	0	$-1{,}5.10^{-4}$	2.10^{-4}
C_2	0	$3{,}8.10^{-2}$	0,4
R_1	0	$-1{,}5.10^{-4}$	0
R_2	0	$-1{,}4.10^{-3}$	0
R_3	0	$-8{,}5.10^{-3}$	0
α	0	$6{,}3.10^{-4}$	7.10^{-4}
Hse	0	$1{,}3.10^{-5}$	0
T_W	0	$-4{,}7.10^{-2}$	4.10^{-4}
T_{se}	0	$7{,}3.10^{-2}$	4.10^{-4}

p-valeur, dérivée de la fonction objective et de la fonction pénalité par rapport aux paramètres

Paramètre	C_2	R_1	R_2	R_3	α	hse	T_{se}	T_W
C_1	-0,18	0,16	-0,16	0,01	0,35	0,36	0,04	0,16
C_2		0,06	-0,03	0,06	-0,95	-0,78	-0,05	-0,07
R_1				-0,03	0,06	-0,08	-0,01	0,04
R_2				-0,07	-0,16	-0,21	-0,04	-0,94
R_3					0,21	0,14	-0,04	-0,35
α						0,75	0,07	0,16
hse							0,05	0,21
Tse								0,34

Matrice de corrélations entre les paramètres

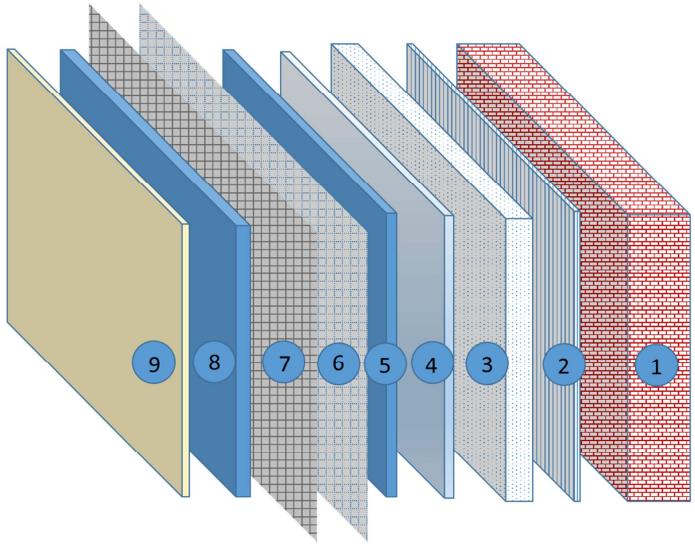


(gauche) Fonction d'autocorrélation (domaine temporel), (droite) Periodogramme cumulée (domaine fréquentiel), les pointillés bleus délimitent l'intervalle de confiance à 95 %

Annexe 8 : Systèmes d'isolation ETICS et FLAG

Système ETICS

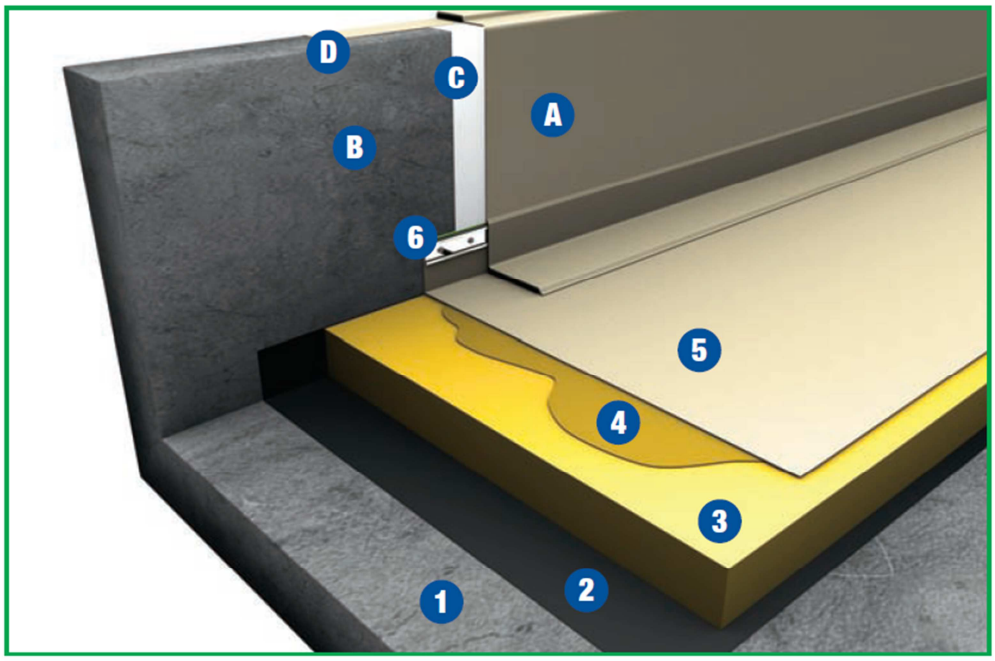
1. Wall to insulate
2. Bed of adhesive
3. NGF AABC
4. Key coat
5. First coat of basecoat
6. Standard glass mesh
7. Reinforced glass mesh
8. Second coat of basecoat
9. Finishing



Material	Density fresh mortar (kg/m3)	Dry extract (%)	Density harded mortar(kg/m3)	Thermal Conductivity W/(m.K)	Sd (m)	Thickness (mm)	Water vapour diffusion resistance coefficient μ
Bed of adhesive	1600	79	1260	0.37	N.C	2	N.C
Key coat (organic primer)	1520	58	880	0.20	0.15	N.C	750
Basecoat	1500	89	1335	0.41	0.013	3	40[1]
Key coat (silicate based)	1060	18	190	0.07	0.03	0.2	150[1]
Top coat							
Smooth mineral topcoat lime based	1600	88	1400	0.45	0.004[1]	2.7	2[2]
Mineral topcoat lime based floated	1500	80	1250	0.36	0.02	0.8	25[2]
Mineral topcoat silicate based	1950	84	1660	0.67	0.20	1	200[1]
Mineral paint	1500	59	870	0.20	0.11	1.1	100[1]
Organic topcoat	1850	85	1570	0.59	0.34	1	340[1]

[1] Value calculated
[2] Value extracted from performance reporting sheet

Système FLAG



Horizontal surface

1. Supporting element
2. Vapour barrier/adhesive layer SOPRAVAP 3 IN 1
3. Insulation element
4. FLEXOCOL A89
5. **FLAGON EP/PV-F**
6. Perimeter pre-drilled bar

Vertical surface

A. **FLAGON EP/PV**

B. h<50 cm FLEXOCOL TPO vertical gluing layer
h>50 cm mechanical fixing

C. Separating layer in non-woven felt (non-adhered roof system)

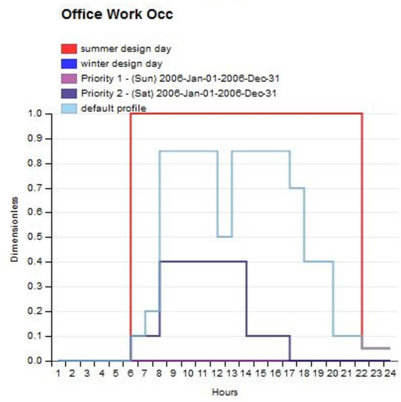
D. Possible finishing elements:
- Flagmetal termination strip and flashing
- Flagmetal strip under cap
- Flagmetal perimeter profile

		EP/PV-F 1,20	EP/PV-F 1,50	EP/PV-F 1,80	EP/PV-F 2,00	Test method
Thickness	(mm)	1,20	1,50	1,80	2,00	EN 1849-2
Weight	(kg/m²)	1,35	1,70	2,00	2,15	EN 1849-2
Tensile strength	(N/5cm)	≥ 550	≥ 650	≥ 800	≥ 850	EN 12311-2
Elongation to break	(%)	≥ 350	≥ 350	≥ 350	≥ 350	EN 12311-2
Tear resistance	(N)	≥ 200	≥ 250	≥ 300	≥ 340	EN 12310-2
Resistance to impact	(mm)	≥ 450	≥ 800	≥ 900	≥ 1250	EN 12691
Cold bending	(°C)	≤ - 40	≤ - 40	≤ - 40	≤ - 40	EN 495-5
Hydrostatic pressure resistance (6 hours at 0,5 Mpa)		waterproof	waterproof	waterproof	waterproof	EN 1928 met. B
Dimensional stability	(%)	≤ 0,1	≤ 0,1	≤ 0,1	≤ 0,1	EN 1107-2
Resistance to artificial weathering	(UV)	no surface cracking	no surface cracking	no surface cracking	no surface cracking	EN 1297
Resistance to static punching	(kg)	≥ 20	≥ 20	≥ 20	≥ 20	EN 12730
Fire resistance		E	E	E	E	EN ISO 11925-2 EN 13501

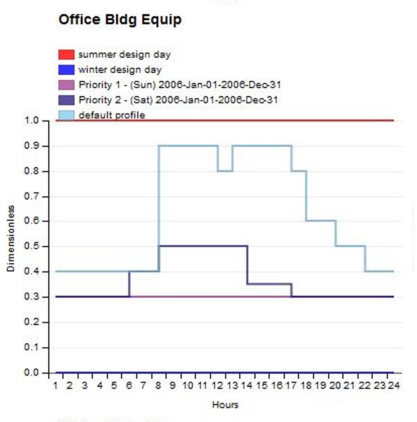
Propriété de la couche d'étanchéité FLAGON EP/PV-F

Annexe 9 : Scénarios utilisés pour les simulations avec Energy Plus

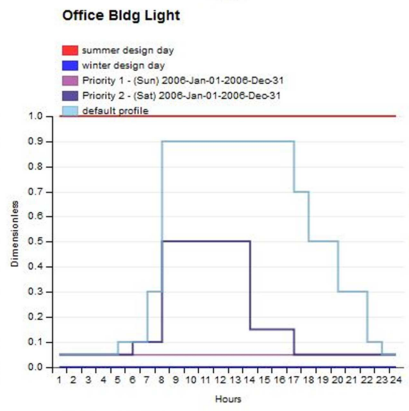
Bâtiment tertiaire



Scénario d'occupation

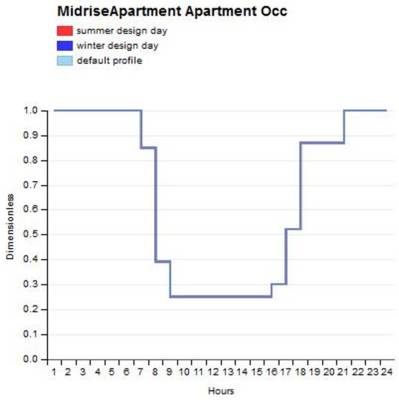


Scénario des équipements électriques

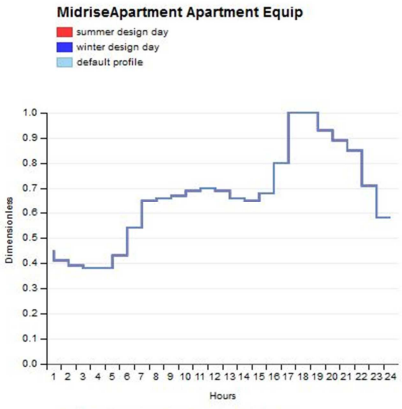


Scénario des lumières

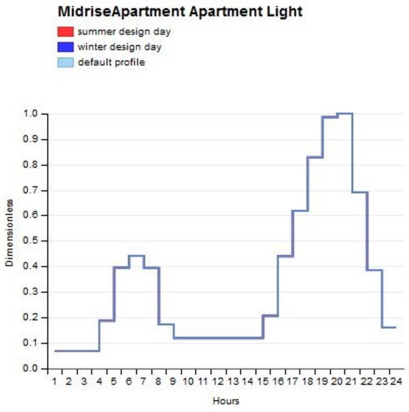
Appartement



Scénario d'occupation



Scénario des équipements électriques



Scénario des lumières

Résumé

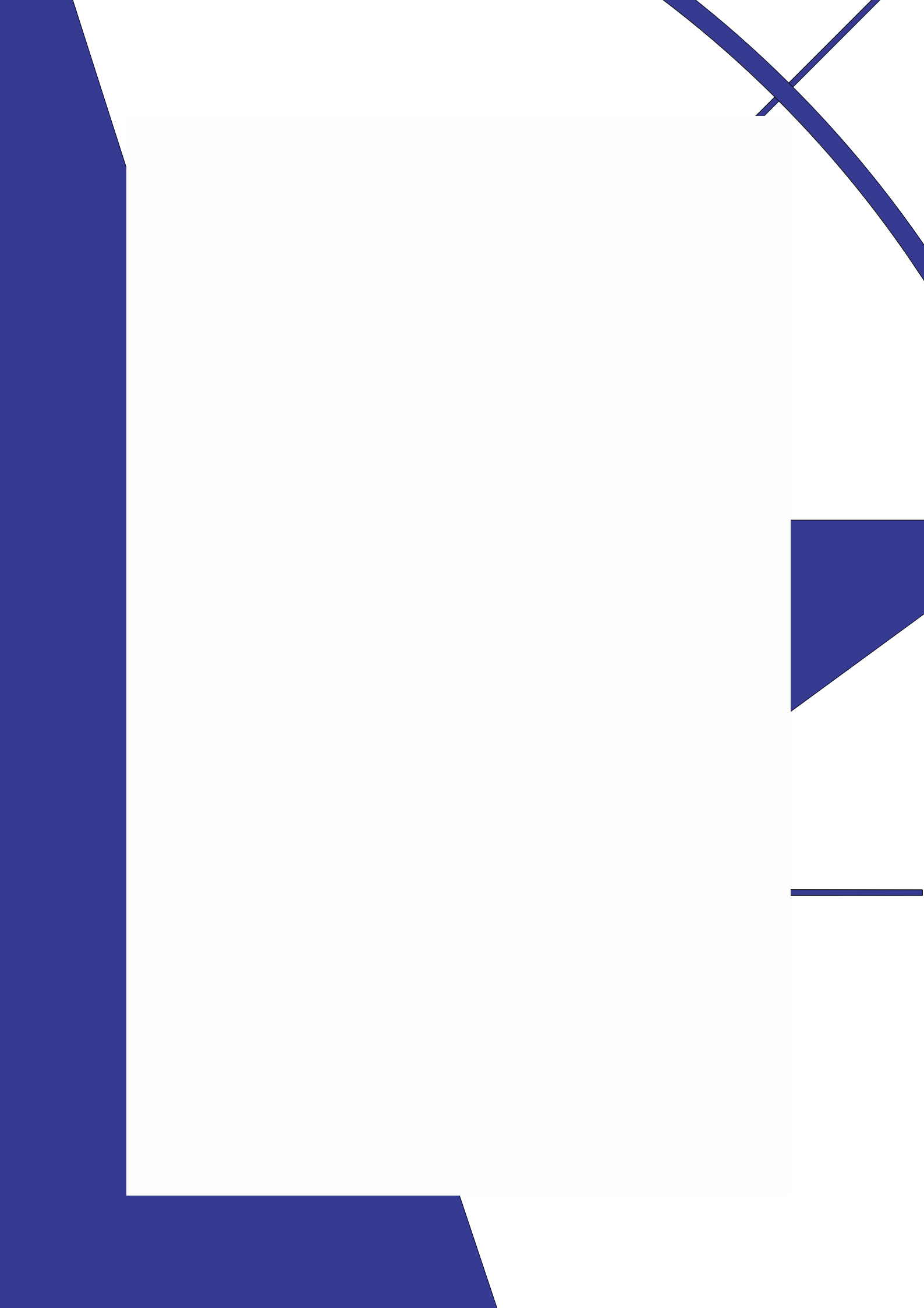
En Europe, le secteur du bâtiment est le plus énergivore et représente environ 40 % de l'énergie totale consommée. À court terme, la façon la plus efficace de baisser cette consommation est de réduire les déperditions thermiques à travers l'enveloppe du bâtiment en augmentant son isolation thermique, tout en minimisant la perte de surface habitable.
Dans ce contexte, les travaux de thèse portent sur l'étude et la mise au point pour préindustrialisation de matériaux super-isolants composites à base d'aérogel de silice. Le matériau composite étudié fait partie de la famille des *blankets* aérogels et est obtenu via un procédé de séchage ambiant innovant. Grâce à leur faible conductivité thermique et leurs propriétés mécaniques renforcées, les *blankets* aérogels sont d'un grand intérêt pour l'isolation thermique qui nécessite de fines épaisseurs d'isolants.
Les travaux de thèse visent dans un premier temps à effectuer une analyse des propriétés thermophysiques des *blankets* aérogels étudiés à la sortie du moule de fabrication et vis-à-vis de leur mise en œuvre lorsqu'ils sont soumis à différentes sollicitations (mécaniques, hygriques ...). Des travaux de modélisation du transfert de chaleur dans le *blanket* aérogel sont développés afin d'étudier les relations entre le transfert thermique et les paramètres morphologiques du matériau. Dans un second temps, les travaux de thèse portent sur l'étude des performances à attendre d'un système d'isolation basé sur le *blanket* aérogel mis en œuvre sur un bâtiment, à la fois par l'analyse du comportement thermique d'une cellule test en climat réel, ainsi que par la conduite de simulations numériques de bâtiments prenant en compte plusieurs techniques constructives, configurations de murs, et ce, pour plusieurs climats européens. Les résultats obtenus montrent que les *blankets* aérogels étudiés ont une très faible conductivité thermique – 0,016 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$– et ont un fort potentiel d'application dans l'isolation thermique du bâtiment.

Mots Clés

isolation thermique, super-isolant, aérogel de silice, *blanket* aérogel, transfert de chaleur, mesures in-situ, conductivité thermique, simulation thermique de bâtiments

Abstract

Buildings are the largest energy end-use sector and account for about 40 % of the total final energy consumption in the EU-28. A short-term strategy to efficiently reduce this consumption is to decrease thermal losses through the building envelope by improving its thermal insulation, while minimizing the reduction of the available indoor living space.
In this context, the thesis deals with the study and development for pre-industrialization of super-insulating composite materials based on silica aerogel. The studied material is part of the aerogel blanket family and is obtained by an innovative ambient drying process. With a very low thermal conductivity and reinforced mechanical properties, aerogel blankets are of great interest for applications where they can offer a cost advantage due to a space-saving effect.
Firstly, the thesis work aims at performing analyses of the thermo-physical properties of the studied aerogel blankets at the exit of the molding and drying processes, and during application, when they are subjected to different environmental stresses (mechanical, hygric ...). Heat transfer modeling is developed to study the relationship between the morphological parameters of the material and thermal transfer within it. Secondly, the thesis work focuses on the study of the expected performances of an insulating system based on the aerogel blanket, by the study of the thermal behavior of an experimental building monitored under actual climate, as well as the use of whole building energy numerical simulations taking into account several constructive techniques, different wall configurations, for various European climates. The results obtained show that the aerogel blankets studied have a thermal conductivity as low as 0.016 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ and have promising applications for building thermal insulation needs.

Keywords

thermal insulation, super-insulating material, silica aerogel, aerogel blanket, heat transfer, in-situ measurements, thermal conductivity, building energy simulation