

# Mécanique des lits de silices granulaires et optimisation de cœur de Panneaux Isolants sous Vide (PIV)

Belynda BENANE<sup>1</sup>, Sylvain MEILLE<sup>2</sup>, Christian OLAGNON<sup>3</sup>, Geneviève FORAY<sup>4</sup>, Bernard YRIEIX<sup>5</sup>

<sup>1</sup>INSA Lyon/ EDF R&D, MATEIS/ Département ENERBAT, mail : [belynda.benane@insa-lyon.fr](mailto:belynda.benane@insa-lyon.fr)

<sup>2</sup>INSA Lyon, MATEIS, mail : [sylvain.meille@insa-lyon.fr](mailto:sylvain.meille@insa-lyon.fr)

<sup>3</sup>INSA Lyon, MATEIS, mail : [christian.olagnon@insa-lyon.fr](mailto:christian.olagnon@insa-lyon.fr)

<sup>4</sup>INSA Lyon, MATEIS, mail : [genevieve.foray@insa-lyon.fr](mailto:genevieve.foray@insa-lyon.fr)

<sup>5</sup>EDF R&D, Département MMC, mail : [bernard.yrieix@edf.fr](mailto:bernard.yrieix@edf.fr)

---

**RÉSUMÉ** – Le panneau isolant sous vide (PIV) est composé d'un matériau de cœur thermoscellé dans une enveloppe hermétique où un vide poussé ( $< 100$  Pa) est établi. Cela permet d'assurer une conductivité thermique entre 2 et 5 mW/ (m.K) contre environ 30 mW/ (m.K) pour les meilleurs isolants classiques. Les cœurs de PIV sont le plus souvent constitués d'un empilement de silices pulvérulentes nanostructurées à très forte porosité ( $>90$  %) avec une structure poreuse très fine ( $< \mu\text{m}$ ). Les silices utilisées proviennent de deux types de procédés de synthèse : (i) les silices pyrogénées (FS) avec lesquelles on obtient des PIV manipulables pour une densité de cœur de 140 kg/m<sup>3</sup> et (ii) les silices précipitées (PS) pour lesquelles une masse volumique de 200 kg/m<sup>3</sup> est nécessaire afin de valider le critère de manipulation. Les PIV à base de silice FS sont les plus efficaces mais leur coût majoritairement lié à la matière première est élevé ( $\sim 2000$  €/m<sup>3</sup>). Le but de cette étude est de comprendre les différences de comportement entre les silices FS et PS, afin de formuler des cœurs de PIV efficaces mécaniquement et thermiquement à un prix compétitif. En premier lieu, il est nécessaire de caractériser le comportement mécanique de ces matériaux granulaires ultraporeux sous sollicitation de compression et de proposer des lois de comportement.

**ABSTRACT.** A vacuum insulation panel (VIP) can be described as an open ultraporous material placed inside a sealed casing in which a high vacuum is established ( $< 100\text{Pa}$ ). This ensures a very low thermal conductivity around 2 and 5 mW/ (m.K) against 30 mW/ (m.K) for the best conventional insulators. VIP cores are commonly made of stacks of highly nanostructured porous ( $>90\%$ ) silica powders with a very fine porous structure ( $< \mu\text{m}$ ). Currently, fumed silica (FS) are employed in VIP cores. They provide efficient core for panels with density about 140 kg/m<sup>3</sup> against 200 kg/m<sup>3</sup> required when using precipitated silica (PS). VIP based on fumed silica are the most efficient but remain very expensive ( $\sim 2000$  €/m<sup>3</sup>). The purpose of this study is to thoroughly understand the properties of both FS and PS silica so as to be able to design VIP core at affordable prices. First, it is necessary to understand the mechanical behaviour of those granular material under compression and ultimately gain the knowledge to improve precipitated silica's performances.

**MOTS-CLÉS :** silice, caractérisation mécanique, super-isolant, nanomatériaux, ultraporeux, PIV.

**KEY WORDS:** silica, mechanical tests, superinsulation, nanomaterial, ultraporous, VIP.

---

## 1 Introduction

Les performances thermiques exceptionnelles des silices nanostructurées les placent au cœur des stratégies de l'efficacité énergétique. Elles sont majoritairement utilisées comme matrice dans les superisolants thermiques. Caractérisées par leur forte porosité (>90%) et leurs faibles tailles de pores, elles limitent la conduction thermique par la voie solide et bloquent le transfert conductif de la voie gazeuse. De ce fait, une large gamme d'isolants thermiques à base de silices nanométriques a vu le jour durant ces dix dernières années, certains à pression atmosphérique comme les aérogels et d'autres sous vides comme les panneaux isolants sous vide (PIV).

A titre indicatif, les isolants thermiques conventionnels tels que les laines minérales ou les mousses polymère ont une conductivité thermique comprise entre 25 et 50 mW/ (m. K) (Tableau 1). Grâce au vide maintenu dans les PIV, la conductivité thermique est 5 fois plus faible et peut atteindre jusqu'à 3,5 mW/ (m.K) [ALA 11]. Pour être aussi performants, les PIV ont pour vocation de limiter tous les modes de transfert thermique : convection, conduction solide, conduction gazeuse, et transfert radiatif. Conséquence de leur très faible conductivité thermique, l'épaisseur des PIV est très faible, généralement inférieure à 30 mm, avantage important dans la rénovation des bâtiments où les contraintes d'encombrement sont importantes comme celle de la perte de surface habitable.

Toutefois, les panneaux isolants sous vide rencontrent un frein majeur à leur commercialisation. Onéreux, ils restent cantonnés à des applications à haute valeur ajoutée. La généralisation de leur utilisation dans le secteur du bâtiment nécessite de revoir à la baisse le coût total des matières premières utilisées pour leur fabrication. Le coût de l'unité fonctionnelle est en euros par m<sup>2</sup> et par point de résistance thermique (1ptR = 1m<sup>2</sup>.K/W). Quelques exemples d'isolants conventionnels performants, des PIV ainsi que de Super Isolants à Pression Atmosphériques (SIPA) sont listés dans le tableau ci-dessous (Tableau 1) [BOU 12].

**Tableau 1:** Conductivité thermique et coût de différents isolants thermiques

<i>Isolants</i>	<i>Laine de verre</i>	<i>Polystyrène (EPS)</i>	<i>Polyuréthane (PU)</i>	<i>PIV</i>	<i>SIPA</i>
<b>Conductivité thermique (mW/ (m.K))</b>	35	30	25	5	15
<b>Coût (€/ ptR)</b>	3	5	6	14	35

Pour atteindre cet objectif, des travaux ont été réalisés dès 2007 entre EDF R&D et la société Microtherm pour développer des formulations de silice efficaces, à coût compétitif pour les âmes de PIV. La substitution des silices pyrogénées (FS) par des silices de précipitation (PS) et/ou fumées de silices n'entraîne pas de modification majeure dans le procédé de fabrication [SOL 07]. Ces travaux sont aujourd'hui poursuivis par EDF R&D et INSA/MATEIS. Dans le cadre de ce projet, deux types de silices sont utilisés : les silices pyrogénées (FS) avec lesquelles on obtient des panneaux manipulables à partir d'une masse volumique de cœur de 140 kg/m<sup>3</sup> et des silices précipitées (PS) pour lesquelles une masse volumique de 200 kg/m<sup>3</sup> est nécessaire. Les PIV à base de silice FS sont les plus efficaces tant mécaniquement que thermiquement [SIM 05] mais restent coûteux (~2000 €/m<sup>3</sup>).

Le but de la présente étude est de comprendre les différences de comportement observées lors des études de procédés d'élaboration de cœur de PIV. Moins chères, les PS sont complexes à manipuler pour réaliser des panneaux avec un rapport prix/efficacité thermique pertinent. Par conséquent, il est nécessaire d'étudier le comportement mécanique de ces matériaux granulaires sous sollicitation de compression. Pour cela, nous avons réalisé un montage de compression œdométrique dédié à ces matériaux ultraporeux. Les essais mécaniques sont associés à des observations structurales locales au MET et globales en porosimétrie mercure. Notre étude comporte trois matériaux qui diffèrent par leur procédé d'élaboration et leur granulométrie.

## 2 Matériaux et méthodes

### 2.1 Matériaux utilisés

Les silices pyrogénées, composant actuellement les cœurs de PIV, sont obtenues par pyrohydrolyse ou par combustion. Leur pureté est élevée et leur concentration en SiO<sub>2</sub> avoisine les 99.9 % en masse. Leur densité moyenne après mise en forme est comprise entre 160 et 220 kg/m<sup>3</sup>, plus élevée que celle des isolants classiques.

L'avantage de ces matériaux est leur porosité, supérieure à 90 % du volume total, associée à une surface spécifique importante (100 - 400 m<sup>2</sup>/g) [BAE 10]. Leurs tailles de particules sont typiquement situées entre 5 et 25 nm. Elles présentent un faible caractère hydrophile et sont généralement utilisées pour leur taille de pores favorable à une faible conductivité thermique de 3 à 6 mW/m.K à de basses pressions [SOL 07][BOUQ 12][MOR 08].

Les silices précipitées, sont obtenues par voie humide, puis filtrées séchées et broyées. Elles possèdent un caractère très hydrophile (plus forte capacité d'adsorption d'eau). Elles sont utilisées dans de nombreux procédés industriels et la chimie de leur synthèse permet d'obtenir toute une gamme de densités, tailles d'agrégats et de surfaces spécifiques.

Le Tableau 2 regroupe les caractéristiques des trois silices étudiées. La silice pyrogénée de référence est notée FS. Elle est comparée à deux silices précipitées PS1 et PS2. Ces deux matériaux sont obtenus respectivement par broyage et atomisation.

**Tableau 2 : Caractéristiques des silices testées (Données fournisseurs)**

Produits	FS	PS1	PS2
Procédé de synthèse	Pyrogénée - Pyrohydrolyse	Précipitée - Broyage	Précipitée - Atomisation
Surface spécifique (m <sup>2</sup> /g)	200 ± 25	250	160
Densité intrinsèque (g/cm <sup>3</sup> )	2,2	1,9 – 2,1	1,9 – 2,1
Diamètre médian des grains de poudre d50 (µm)	< 10	10	3,5

## 2.2 Protocoles expérimentaux

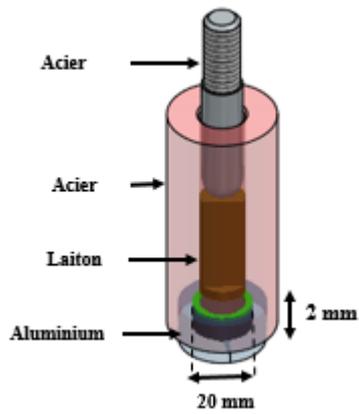
### 2.2.1 Compression œdométrique

Ces essais ont été réalisés en utilisant une cellule œdométrique conçue sur mesure au laboratoire MATEIS (Figure 1). Compte tenu des faibles dimensions de pastilles souhaitées (20 mm de diamètre et 2 mm d'épaisseur), l'objectif était de limiter au maximum les frottements sur l'interface piston/matrice. Deux paramètres importants ont été pris en compte, l'adhérence et le coefficient de frottement. Le premier correspond à l'effort nécessaire à la mise en mouvement du piston à partir d'une position statique. Le second paramètre caractérise la résistance au déplacement durant une phase de mouvement établi. Les matériaux optimaux sont pour le couple corps/piston : acier/ laiton avec un coefficient de frottement de 0,12/0,15 et un coefficient d'adhérence de 0,15.

La compression œdométrique des poudres de silice se fait en trois étapes à température et humidité ambiantes. Tout d'abord l'étape de remplissage qui implique uniquement un écoulement gravitaire. Puis, une phase de montée de charge qui correspond à l'étape de compression du matériau granulaire et enfin la décharge. Lors de la compression, l'essai est réalisé en déplacement contrôlé à vitesse imposée (10 mm/min). La charge limite est fixée à 400 N, pour une masse de poudre initiale de 200 mg pour toutes les silices. Tous les essais sont répétés trois fois. Nous obtenons ainsi trois pastilles compactées dans les mêmes conditions, c'est-à-dire à masse de départ et force de compression égales, pour chacune des trois silices (Tableau 1) [BOU 12].

**Tableau 3 : Conditions expérimentales des compressions œdométriques**

Masse SiO <sub>2</sub> (mg)	Vitesse de compression (mm/min)	Force maximale (N)	Humidité relative (%)	Température (°C)
200 ± 0,3	10	400 ± 3	44 ± 3	22 ± 2



**Figure 1 :** Matrice de compression œdométrique

### 2.2.2 Fluage

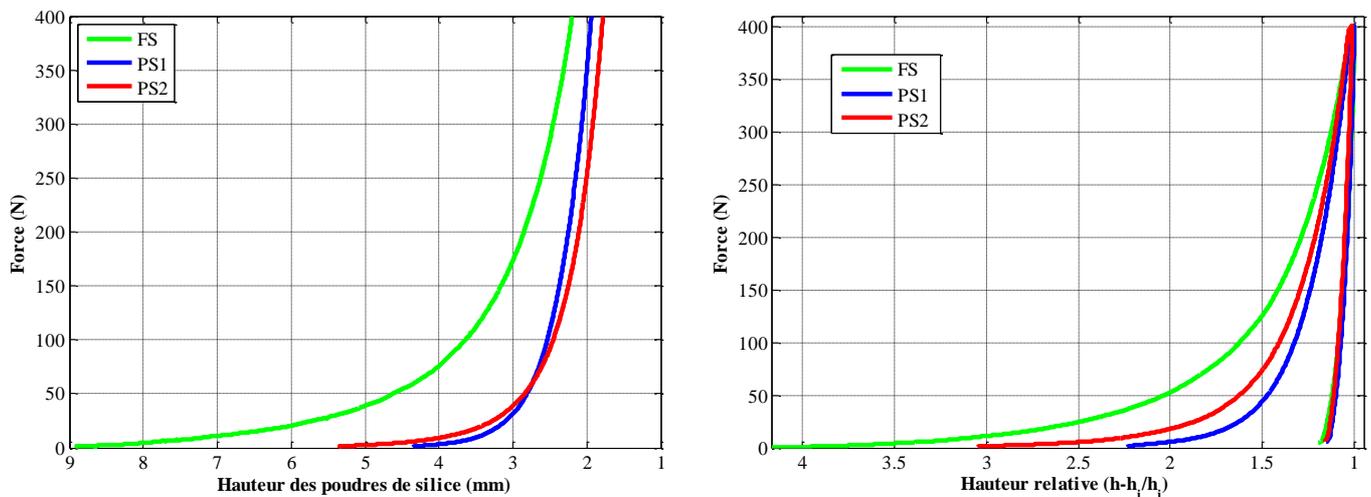
Les essais de fluage consistent à imposer une contrainte donnée et à observer la déformation du matériau en fonction du temps. Les fluages ont été réalisés en compression. Comme décrit précédemment, la charge se fait à vitesse de déplacement imposée à 10 mm/min. Puis, le fluage des pastilles est observé en maintenant la force maximale à 400 N pendant 30 min. La viabilité des essais et leur répétabilité est vérifiée en testant trois échantillons par silice le même jour pour éviter toutes variations des conditions hygrothermiques. Ces variations sont mesurées lors de chaque essai.

### 2.2.3 Relaxation

L'essai de relaxation consiste à imposer une déformation (et donc un déplacement) et à enregistrer la relaxation de la charge en fonction du temps après l'étape de compaction à 400N. L'essai de relaxation dure 30 min et trois échantillons par poudre de silices ont été testés pour les mêmes raisons que celles citées précédemment.

## 3 Résultats

### 3.1 Compression œdométrique



**Figure 2 :** Montée de charge en absolu (à gauche) et cycle de charge/ décharge en hauteur relative sur silices brutes (à droite)

Les courbes force en fonction de de la hauteur relative des pastilles sont obtenues en faisant la moyenne des trois essais.

Rappelons que dans le cas de sphères parfaites monomodales non déformables, le réarrangement d'agglomérats sous une contrainte donnée est faible, ce qui se traduit par une pente raide de la force en fonction du déplacement. La Figure 2 met en évidence différents pieds de courbe dont les pentes sont variables. Ainsi dit, il semblerait que les agglomérats composant les silices soit de forme irrégulière et fortement dispersée et/ou qu'ils soient déformables.

Selon le graphe à gauche de la Figure 2, les épaisseurs des pastilles obtenues en fin de compression sont respectivement de 1,8 mm pour PS2, 1,9 mm pour PS1 et 2,2 mm pour FS. De plus, on note que la hauteur avant compression de la silice FS est plus grande que celle des silices PS pour une même masse de poudre initiale. En considérant que les forces de frottements entre grains<sup>1</sup> sont égales, on peut déduire que la distribution de tailles de grains est plus large pour la silice pyrogénée. Et, PS1 semble se compacter plus facilement.

Sur le graphe de droite de la Figure 2, l'axe des abscisses est cette fois-ci en hauteur relative. Les courbes confirment que l'amplitude de réarrangement pour la silice FS est plus grande que celle de PS2, elle-même plus élevée que celle de PS1. Dès lors, on en déduit que la taille de grains moyenne donnée par les fournisseurs n'est pas directement reliée à l'amplitude de montée de charge des silices (Tableau 2). Si tel était le cas, la courbe correspondant à FS serait comprise entre celles de PS1 et PS2. Des mesures de granulométrie laser à sec à pressions variables seraient indispensables pour pouvoir vérifier ce résultat.

Le taux de porosité  $\theta$  après compaction des poudres est calculé par la relation [1] avec  $\rho$ , la masse volumique de la poudre de silice avant compaction ( $\text{kg/m}^3$ ) et  $\rho_s$ , la masse volumique squelettique de la silice ( $2200 \text{ kg/m}^3$ ).

$$\theta = 1 - \frac{\rho}{\rho_s} \quad [1]$$

Les valeurs obtenues (Tableau 4) étayent les observations précédentes. On note bien que la silice FS est la moins dense des 3 poudres étudiées avec un taux de porosité plus élevé. Les résultats de porosimétrie mercure et du BET nous permettront de mieux apprécier ces résultats.

**Tableau 4 :** Densités des silices et taux de porosité

Type de silices	hauteur avant charge (mm)	Hauteur à $F_{\max}$ (mm)	Densité avant charge ( $\text{kg/m}^3$ )	Densité après compaction ( $\text{kg/m}^3$ )	Taux de porosité $\theta$ apparent (%)
FS	9	2,2	71	289	87
PS1	4,3	1,92	148	331	85
PS2	5,3	1,76	120	362	84

Le calcul des taux de porosité reste cohérent avec la problématique thermique des PIV. Le compact de silice pyrogénée est plus poreux que les deux autres, et donc plus efficace thermiquement si les porosités caractéristiques sont de tailles identiques.

### 3.2 Fluage et relaxation des compacts de silice

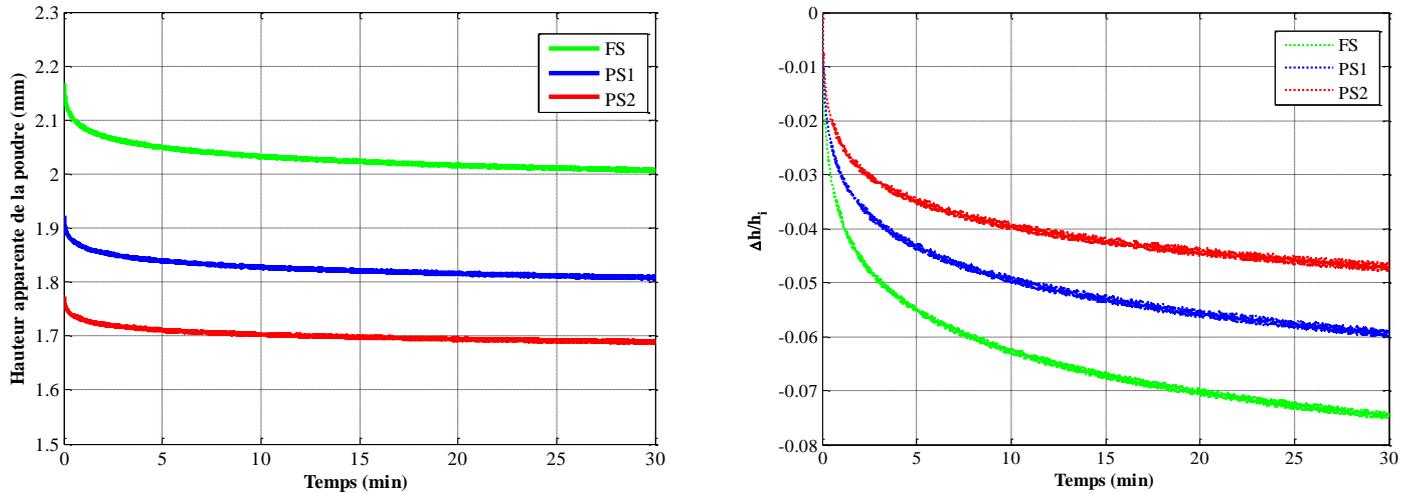
#### 3.2.1 Fluage

La représentation du fluage en compression des silices (Figure 3) confirme que les épaisseurs des pastilles varient pour une même masse de départ. Toutefois, une comparaison objective de ces résultats ne peut se faire qu'en normalisant les résultats obtenus par rapport à la hauteur initiale des pastilles dans la matrice en fin de compression, c'est-à-dire lorsque la force est égale à 400 N. Compte tenu de la faible hauteur des pastilles et des

<sup>1</sup> La définition du « grain » de silice n'est pas bien connue. On suppose qu'il correspond à la plus grosse taille d'agrégat non sécable.

frottements négligeables, on peut considérer que la déformation du matériau est homogène. Cela permet de tracer la déformation moyenne de la pastille en fonction du temps de fluage.

La déformation des poudres en fonction du temps pendant le fluage est respectivement plus importante pour la silice pyrogénée FS, PS1 et enfin PS2. En général, dans le cas des matériaux granulaires, l'augmentation du diamètre des agglomérats réduit le fluage. Ici, pour autant que l'on puisse se fier aux données fournisseurs, cette hypothèse n'est pas vérifiée. En effet, les résultats suggèreraient que la PS2 ait la plus grande taille d'agglomérats et la silice FS la plus petite. Cela devra toutefois être validé par une caractérisation microstructurale détaillée (MET, BET, ...).



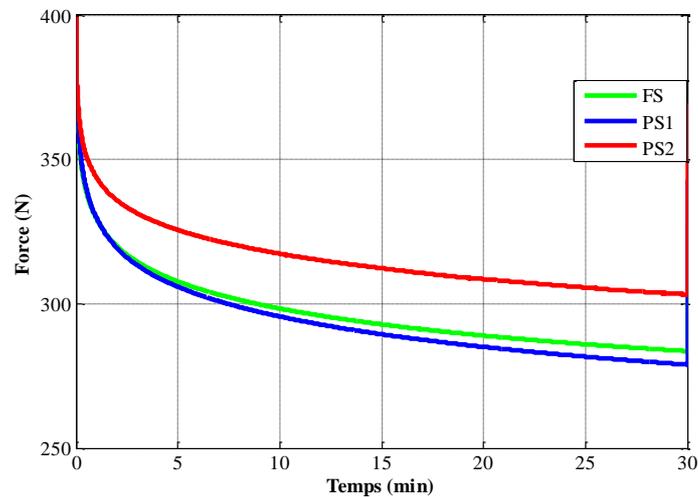
**Figure 3 :** Comparaison des fluages des silices brutes (non séchées) en absolu (à gauche) et en relatif (à droite)

Dans le cas des PIV, la présence du fluage peut être un inconvénient du point de vue thermique. En effet, si le fluage est important dans un PIV, il pourrait contraindre le volume à se tasser davantage jusqu'à abaisser le taux de porosité de l'isolant et l'épaisseur du panneau, avec dans les deux cas une diminution induite de la résistance thermique. Par conséquent, il serait nécessaire de vérifier si le fluage à force plus élevée n'abaisserait pas la taille ainsi que la présence des pores dans les compacts de silices. Le fluage peut aussi être un inconvénient du point de vue mécanique, par exemple dans l'application plancher où la réglementation demande des niveaux de stabilité dimensionnelle, fluage compris, adaptés à l'usage du local.

### 3.2.2 Relaxation

En général, les mécanismes induisant le fluage ou la relaxation sont similaires. Et, par des modèles viscoélastiques (amortisseurs, patins, ressorts), la prévision de l'un peut être faite par la modélisation de l'autre. Dans le cas des silices étudiées, l'ordre des courbes de relaxation n'est pas tout à fait le même que celui du fluage (Figure 3 et Figure 4). La Figure 4 montre que la présence de relaxation n'est pas à relier directement au procédé d'élaboration de la silice. En effet, FS et PS1 respectivement silices pyrogénée et précipitée présentent le même profil de relaxation.

Ce dernier est plus important que celui de la PS2. Les silices PS1 et FS possèdent une caractéristique microstructurale commune. Leur surface spécifique est très proche, soit 250 m<sup>2</sup>/g pour PS1 et 200 ±25 m<sup>2</sup>/g pour FS (Tableau 2) L'influence de ces paramètres sur la relaxation sera à confirmer.



**Figure 4 :** Relaxation des silices brutes après compression à 400 N

#### 4 Conclusion

Un essai de compression œdométrique dédié aux silices nanostructurées, impliquant de faibles frottements a été mis au point, pour étudier les propriétés mécaniques des cœurs de PIV.

Dans un premier temps, trois silices obtenues par des procédés de pyrohydrolyse ou de précipitation, atomisées ou non sont comparées. Les études comparatives des essais de compression, fluage et relaxation ont mis en évidence, pour les matériaux choisis, la faible compacité et donc la forte porosité globale de la silice pyrogénée FS par rapport aux silices précipitées PS1 et PS2. Les essais de compression œdométrique indiquent une plus grande distribution de taille de grains pour la silice FS et une meilleure compressibilité pour la silice PS1, si ces matériaux sont confirmés indéformables.

On a également montré que le fluage et la relaxation des poudres de silices ne sont pas reliés par un modèle viscoélastique. En effet, l'ordre des courbes des deux essais n'est pas le même. Pour l'essai de fluage, le résultat suggère que la taille du plus grand agrégat serait celui de la PS2 tandis que les données fournisseurs montrent l'inverse. Quant à l'essai de relaxation, il suggère que la nature de la silice ne conditionne pas la réponse au déplacement imposé en fonction du temps.

Prochainement nous nous intéresserons aux caractérisations microstructurales des silices (MET, porosimétrie Hg, adsorption/désorption de N<sub>2</sub>) pour pouvoir mesurer les tailles des pores, des agrégats et des particules de chaque type de silice. Le but serait de disposer des connaissances permettant de faire le lien entre la microstructure et les propriétés mécaniques des silices.

## 5 Bibliographie

[ALA 11] ALAM M., SINGH H., LIMBACHIYA M.C., « Vacuum insulation panels (VIPS) for building construction industry- a review of the contemporary developments and future directions », *Appl Energy*, vol. 11, no. 11, 2011, p. 3592-3602.

[BAE 10] BAETENS R., JELL B.P., THUE J.V., TENPIERIK M.J., GRYNNING S., UVSLOKK S., GUSTAVSEN A., « Vacuum insulation panels for building applications : a review and beyond », *Energy Build*, vol. 42, 2010, no 7465, p 147-172.

[BOU 12] BOUQUEREL M., Influence des transferts hygro-aérauliques sur les transferts thermiques dans les superisolants nanostructurés sous vide, Thèse de doctorat, INSA Lyon\_ CETHIL UMR 5008, 2012

[MOR 08] MOREL B., Vieillissement thermohydrigue de silices nanométriques, Thèse de doctorat, Université François Rabelais, 2008.

[QUE 04] QUENARD D., Propriétés thermo-physiques de deux silices pyrogénées micro nano poreuses : effet de l'humidité et de la température, rapport de recherche, septembre 2004, CSTB.

[SIM 05] SIMMLER H, BRUNNER S, HEINEMANN U, SCHWAB H, KUMARAN K, MUKHOPADHYAYA P. QUENARD D, SALLEE H, NOLLER K, KÜKÜKPINAR-NIARCHOS E, STRAMM C, TENPIERIK M, CAUBERG H and Erb M, "Vacuum Insulation Panels. Study on VIP-components and panels for service life prediction of VIP in building applications (Subtask A)", Technical report, IEA/ECBCS Annex 39, 2005, IEA/ECBCS, Annex 39, HiPTI-project (High Performance Thermal Insulation for Buildings and Building Systems)

[SOL 07] SOLANO D.P., Développement d'une formulation de silice efficace et à coût compétitif pour les âmes des panneaux superisolants sous vide, rapport de recherche n° 0604C0075, mai 2007, Arcelor Mittal.