



Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)

Présentée et soutenue par :
Bénédicte Reine

Le vendredi 26 septembre 2014

Titre :

Étude et simulation de la conductivité thermique de matériaux composites à matrice organique chargée et renforcée de fibres de carbone PITCH

ED MEGEP : Génie mécanique, mécanique des matériaux

Unité de recherche :

Institut Clément Ader (ICA)

Directeur(s) de Thèse :

Pr. Philippe Olivier - ICA, Université Paul Sabatier
Dr. Gilles Dusserre - ICA, École des Mines d'Albi-Carmaux

Rapporteurs :

Pr. Evelyne Toussaint - Institut Pascal, Université Blaise Pascal
Pr. Tahar Loulou - LIMAT B, Université Bretagne -Sud

Autre(s) membre(s) du jury :

Pr. Zoheir Aboura - Laboratoire Roberval, UTC (Président)
Dr. Laurent Gornet - Institut de recherche en Génie Civil et Mécanique, ECN (Examineur)
Dr. Michel Fournié - IMT, Université Paul Sabatier (Examineur)
Mr. Christophe Venencie - THALES SA (Invité)

Remerciements

Ce travail de thèse s'est déroulé au sein de l'Institut Clément Ader sur le site de l'IUT Génie Mécanique et Productique de Toulouse. Cette thèse a été l'occasion de revenir aux sources. L'IUT a vu mes premiers pas dans le monde recherche et c'est avec émotion que je ferme ce chapitre là où tout a commencé.

Je tiens en premier lieu à remercier le Professeur Zoheir Aboura, le Professeur Evelyne Toussaint, le Professeur Tahar Loulou, le Docteur Michel Fournié, le Docteur Laurent Gornet et Monsieur Christophe Venencie pour m'avoir fait l'honneur d'évaluer mon travail et pour les remarques constructives qu'ils ont pu apporter.

Je souhaite également remercier mes deux directeurs de thèse, le Professeur Philippe Olivier et le Docteur Gilles Dusserre pour leur soutien et leur écoute durant ces quatre années.

Je n'oublie pas toutes les personnes qui m'ont apporté leur soutien pendant toutes ces années. Merci Michel pour tes précieuses lumières mathématiques sans lesquelles les ellipsoïdes resteraient encore un grand mystère. Thierry, grâce à toi Java n'est plus un obscur langage (mais je suis encore loin d'être fluent!). Linh, merci de m'avoir mis le pied à l'étrier d'Abaqus et pour ton aide précieuse sur la partie expérimentale.

Un grand merci également à mes anciens professeurs qui sont devenus des collègues puis des amis. Une pensée particulière pour certains. Jeannot, nos longues discussions plus ou moins philosophiques sur la thèse vont me manquer. Merci de m'avoir aidé à prendre du recul. Philippe, tu m'as donné le goût pour la science des matériaux il y a 10 ans et Montréal m'a fait découvrir d'autres facettes! Bernard, merci de m'avoir changé les idées et merci pour la zapette. La soutenance n'aurait pas été pareille! Jacques, tu es celui qui m'a montré la voie de la modélisation et de la recherche. Merci de m'avoir poussé tout au long de ces années, sans toi je n'aurais peut être pas persévéré autant. Un grand merci également à Nathalie. Ton soutien sur tous les aspects aussi bien administratifs que sur les manip m'a énormément soulagé et ne parlons pas des pauses café!

Une pensée également pour tous les techniciens de l'IUT GMP mais également au CRITT pour leur aide et leur soutien.

Cette thèse n'aurait pas été ce qu'elle est sans les anciens et actuels doctorants. Mauricio et François qui m'ont montré le chemin. Yves, Christophe, Ambre, Nicolas et tous les autres avec qui j'ai fait un bout de chemin, merci pour votre soutien. À tous ceux qui vont finir, courage c'est la dernière ligne droite! (Elle est longue mais bon...)

Je remercie également ma famille et ma belle famille pour leur soutien et leur présence. Notamment mes beaux parents pour nous avoir supporté pendant 10 mois sous leur toit. Mais également mes amis proches, Mathieu, Franz, Patrice grâce à qui je ne vois plus les Nuls et la recherche de la même manière (certains comprendront la référence). Une pensée spéciale pour Steph, tu m'as permis de renouer avec ma créativité et de dérouiller mes dix doigts.

Enfin toutes mes pensées vont à Vincent pour son soutien, ses encouragements, pour toujours croire en moi après toutes ces années et surtout pour me supporter encore...! Merci de partager les hauts et les bas depuis tant d'années. Sans toi cette thèse ne serait pas!

Table des matières

CONTEXTE INDUSTRIEL ET OBJECTIFS DE LA THÈSE	1
1 Etat de l'art	5
1.1 Modélisation analytique de la matrice chargée	7
1.1.1 Modèles avec interface parfaite	8
1.1.2 Modèles avec interface imparfaite	17
1.2 Modélisation numérique de la matrice chargée	25
1.2.1 Distribution aléatoire de particules basée sur la méthode RSA	25
1.2.2 Distribution aléatoire de particules basée sur la dynamique moléculaire	26
1.3 Modélisation des renforts fibres longues	27
1.3.1 Unidirectionnels	28
1.3.2 Renforts de type textiles 2D	35
1.4 Méthodes de mesures	43
1.4.1 Source Plane Transitoire	43
1.4.2 Méthode Flash	45
1.5 Conclusion	48
2 Matrice chargée - Modélisation Numérique	51
2.1 Objectif - Introduction	51
2.2 Modèle de distribution aléatoire de sphères	52
2.2.1 Définition du modèle	52
2.2.2 Étude de sensibilité	57
2.2.3 Comparaison entre les modèles numériques et analytiques	70
2.3 Modèle de distribution aléatoire d'ellipsoïdes	72
2.3.1 Modèle 2D	73
2.3.2 Modèle 3D	80
2.4 Conclusion	83

3	Matrice chargée - Validation expérimentale	85
3.1	Introduction	86
3.2	Brefs rappels bibliographiques	86
3.3	Constituants	88
3.3.1	Choix de la matrice	88
3.3.2	Choix des particules	89
3.4	Procédés de mélange	92
3.5	Contrôle de la distribution de particules	92
3.6	Détermination du coefficient de conductivité thermique par expérimentation . . .	95
3.6.1	Mesure de diffusivité thermique par méthode flash	95
3.6.2	Mesure de la chaleur spécifique C_p	97
3.6.3	Mesure de la masse volumique	104
3.7	Comparaison des valeurs analytiques, numériques et expérimentales	107
3.7.1	Comparaison entre modèle analytique et résultats expérimentaux	107
3.7.2	Comparaison entre modèle numérique et résultats expérimentaux	114
3.8	Conclusion	116
4	Renforts textiles et composites	119
4.1	Introduction	120
4.2	Renforts textiles unidirectionnels	120
4.2.1	Introduction	120
4.2.2	Conductivité thermique longitudinale	121
4.2.3	Conductivité thermique transverse	127
4.3	Renforts textiles 2D	132
4.3.1	Constituants	132
4.3.2	Procédé de mise en forme	135
4.3.3	Caractérisation thermique	137
4.3.4	Modélisation numérique	140
4.4	Conclusion	149
	Conclusions et Perspectives	151
	Bibliographie	155
	Annexes	163
A	Programme de génération aléatoire de sphères dans un V.E.R. cubique 3D	163
A.1	Classe <i>Point</i>	163
A.2	Classe <i>Parameter</i>	164
A.3	Classe <i>MainSphere</i>	165

B	Linéarisation du modèle 2D : Explicitation des équations	171
C	Programme de génération aléatoire d'ellipses dans un V.E.R. carré 2D	175
C.1	Fonction <i>parameter</i>	175
C.2	Fonction <i>Newton</i>	175
C.3	Fonction <i>collision</i>	178
C.4	Fonction <i>MainEllipse</i>	180
D	Linéarisation du modèle 3D : Explicitation des équations	181
E	Granulométrie des particules d'aluminium	189

Table des figures

1	Démarche suivie	2
2	Relations entre les différents partenaires du projet	3
1.1	Modèles basiques de matériaux multicouches	9
1.2	Comparaison de données expérimentales de la littérature [5,6] avec les bornes de Wiener	11
1.3	Comparaison entre les limites inférieures de Wiener (BWB) et de Hashin et Strikman (BHB)	13
1.4	Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la sphéricité des particules pour le modèle de Hamilton et Crosser [11]	14
1.5	Représentations géométriques des différentes distributions	16
1.6	Modèle auto-cohérent	21
1.7	Influence de différents paramètres sur la conductivité thermique dans le cas de particules sphériques pour le modèle de Hasselman et Johnson [18]	23
1.8	Composite unidirectionnel	29
1.9	Éléments utilisés pour l'analogie entre le transfert de chaleur transverse et le chargement en cisaillement longitudinal [4]	30
1.10	Volume élémentaire représentatif bi-dimensionnel de Springer et Tsai [4]	30
1.11	Modèle auto-cohérent	31
1.12	Définition des paramètres a et b	32
1.13	Fibres orthotropes	33
1.14	Système de coordonnées polaires pour une fibre cylindrique orthotrope	35
1.15	Exemple de V.E.R. pour un taffetas	36
1.16	Conditions aux limites	36
1.17	V.E.R. d'un taffetas défini par Dasgupta et al. [52]	36
1.18	V.E.R. dans le plan	38
1.19	V.E.R hors plan	39
1.20	V.E.R. défini par Ning et Chou [47]	39
1.21	Réseau 3D de résistance thermique défini par Ning et Chou [47]	41
1.22	Hot Disk	44

1.23	Exemple d'un dispositif de mesure par méthode flash : LFA 457 NETZSCH	45
1.24	Détermination de $t_{1/2}$	46
1.25	Courbes théoriques développées par Cowan [60]	47
2.1	Effet de la mise en œuvre sur la dispersion des particules dans la matrice	53
2.2	Algorithme de génération de particules sphériques dans un V.E.R. cubique avec des positions aléatoires	54
2.3	Exemple d'un tirage aléatoire laissant dépasser les sphères du V.E.R.	55
2.4	Représentation des paramètres géométriques à prendre en compte pour le calcul du paramètre de non collision dans le cas du modèle sphère	55
2.5	Exemple de V.E.R. généré	56
2.6	Exemple de maillage	58
2.7	Conditions aux limites	59
2.8	Influence des conditions aux limites sur le coefficient de conductivité thermique, suivant l'axe selon lequel elles sont imposées	60
2.9	Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la densité de flux appliquée et de la taille du maillage pour un V.E.R. de $25 \mu m$ de côté pour différentes distributions aléatoires de particules	61
2.10	Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la densité de flux appliquée et de la taille du maillage pour un V.E.R. de $50 \mu m$ de côté pour différentes distributions aléatoires de particules	61
2.11	Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la densité de flux appliquée et de la taille du maillage pour un V.E.R. de $100 \mu m$ de côté pour différentes distributions aléatoires de particules	62
2.12	Exemple de maillage pour un V.E.R. de $25 \mu m$ de côté	63
2.13	Exemple de maillage pour un V.E.R. de $50 \mu m$ de côté	64
2.14	Exemple de maillage pour un V.E.R. de $100 \mu m$ de côté	65
2.15	Modèles avec arrangements périodiques	66
2.16	Modèles particuliers de répartition de sphères	67
2.17	Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction du rayon moyen des particules R pour différentes répartitions aléatoires M_i	69
2.18	Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la fraction volumique de particules. Matrice époxy ($\lambda = 0.2 W.m^{-1}.K^{-1}$) et particules d'aluminium ($\lambda = 237 W.m^{-1}.K^{-1}$)	70
2.19	Comparaison entre les modèles analytiques et numérique	71
2.20	Exemple de particules dopantes	72
2.21	Algorithme de génération de particules elliptiques dans un V.E.R. avec des positions aléatoires	73
2.22	Définition de la géométrie paramétrage des particules elliptiques	74
2.23	Exemple d'interférence entre ellipses - Modèle 2D	77

2.24	Exemple de distribution aléatoire de particules elliptiques dans un V.E.R. 2D pour différentes fractions volumiques	79
2.25	Définition de la géométrie et du paramétrage des particules ellipsoïdales	81
3.1	Etat de l'art des différents types de particules utilisées avec leur coefficient de conductivité thermique associé [53–56, 63–75]	87
3.2	Procédé de dispersion des particules dans la matrice	92
3.3	Photos dans l'épaisseur, des échantillons de matrice époxy chargée de particules d'aluminium Z600	93
3.4	Observation au microscope optique de matrice chargée de particules d'aluminium Z600	94
3.5	Particules d'aluminium 10μ <i>sphérique</i> seules avant dispersion (MEB)	94
3.6	Particules de cuivre	95
3.7	Mesures de C_p par DSC sur les échantillons de matrice dopée par des particules d'aluminium Z600	99
3.8	Comparaison des valeurs moyennes de C_p à 23°C en fonction de la fraction volumique, v_p , des mesures faites en DSC et Nanoflash et de la loi des mélanges, sur les échantillons de résine époxy LY556/D230 chargés de particules d'aluminium Z600	101
3.9	Mesures de C_p par DSC sur les échantillons de matrice dopée par des particules d'aluminium 10μ <i>sphérique</i>	103
3.10	Mesure de C_p par DSC sur les échantillons de matrice dopée par des particules de cuivre	104
3.11	Schéma de principe de la balance hydrostatique	105
3.12	Comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle de Hamilton dans le cas de particules sphériques ($n = 3$)	108
3.13	Définition géométrique d'un ellipsoïde modèle	109
3.14	Influence du facteur n du modèle de Hamilton comparé aux résultats expérimentaux sur les particules d'aluminium Z600	112
3.15	Influence du facteur n du modèle de Hamilton comparé aux résultats expérimentaux sur les particules d'aluminium 10μ <i>sphérique</i>	113
3.16	Exemple de particules de graphite	113
3.17	Influence du facteur n du modèle de Hamilton comparé aux résultats expérimentaux sur les particules de cuivre	114
3.18	Comparaison des résultats numériques et expérimentaux	115
4.1	Modélisation d'une fibre isotrope transverse de section circulaire	121
4.2	V.E.R. dans le cas de la caractérisation de la conductivité thermique longitudinale de renforts UD	121
4.3	Conditions aux limites appliquées sur le modèle longitudinal	122
4.4	Exemple de la distribution de température du modèle longitudinal dans le cas $b = 4\ \mu\text{m}$, $L = 2\ \text{mm}$	124

4.5	Évolution du coefficient de conductivité thermique longitudinal en fonction de la fraction volumique de fibres pour différentes longueurs L de fibres. $\lambda_m = 0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $\lambda_{ft} = 500 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ et $\lambda_{ft} = 5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	126
4.6	Enroulement filamentaire de la fibre XN-90-60S	127
4.7	Section du renfort UD fabriqué par enroulement filamentaire	128
4.8	V.E.R. 2D dans le cas de la caractérisation de la conductivité thermique transverse de renforts UD	129
4.9	Conditions aux limites dans le cas d'un flux de chaleur transverse	130
4.10	Exemple de la distribution de température du modèle transverse 2D	131
4.11	Comparaison de l'évolution de la conductivité thermique transverse en fonction de la fraction volumique de fibres entre les modèles analytiques et numériques . .	132
4.12	Architecture des renforts 2D	134
4.13	Processus d'injection RTM (Resin Transfer Molding)	135
4.14	Cycles d'injection et de cuisson de la résine MAP R12.13.03.i1. Procédé RTM. Presse RTM de l'ICA de Toulouse.	136
4.15	Moule RTM ICA. Dimensions planes 300x300 mm	137
4.16	Dialogue numérique/expérimental	141
4.17	Hypothèse mèche non imprégnée	142
4.18	Définition du V.E.R. du taffetas	142
4.19	V.E.R. du tissu taffetas EWC-300X	143
4.20	Observation au microscope optique de la section des mèches et du contact entre mèches du tissu taffetas	143
4.21	Nouveau profil de la section des fibres [80]	143
4.22	V.E.R amélioré du tissu taffetas EWC-300X	144
4.23	Conditions aux limites appliquées sur le V.E.R. taffetas	145
4.24	Schéma de l'imprégnation réelle des mèches	146
4.25	Observations MEB des mèches du tissu EWC-300X	146
4.26	Traitement des images par ImageJ	147
E.1	Granulométrie des particules d'aluminium Z600	190
E.2	Granulométrie des particules d'aluminium 10μ sphérique	191

Liste des tableaux

1.1	Fraction volumique maximum ϕ_m en fonction de la forme des particules et de leur distribution [2, 3]	15
1.2	Valeurs du paramètre A pour différentes formes et distributions de particules	17
1.3	Fraction volumique maximum de fibres (ϕ_m) en fonction de la distribution des fibres dans la mèche	34
1.4	Valeurs du paramètre A en fonction de la direction du flux de chaleur par rapport aux fibres	34
1.5	Valeurs des paramètres c_i en fonction du type de tissés	43
2.1	Valeur de L en fonction de la fraction volumique v_p	57
2.2	Comparaison des valeurs du coefficient de conductivité thermique selon le type d'arrangement des particules avec une fraction volumique théorique de particules constante	67
2.3	Taille du V.E.R. L en fonction du rayon moyen des particules r	68
3.1	Sélection des résines (RESCOLL)	89
3.2	Particules testées par l'ICA	90
3.3	Particules testées par RESCOLL. Les valeurs de λ , ρ et C_p des particules n'ont pas été fournies. Pour les particules Z600 : $\lambda_{Z600} = 237 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $\rho_{Z600} = 2700 \text{ kg.m}^{-3}$ et $C_{pZ600} = 0.880 \text{ J.g}^{-1}.\text{°C}^{-1}$	91
3.4	Caractéristiques des deux systèmes de mesure de diffusivité thermique de NETZSCH	96
3.5	Mesures de diffusivité thermique des échantillons chargés de particules d'aluminium et de cuivre à 23°C	97
3.6	Mesures moyennes de C_p à 23°C des échantillons chargés de particules d'aluminium Z600	98
3.7	Comparaison des valeurs de C_p à 23 ° C obtenues par DSC des échantillons de résine époxy LY556/D230 chargés de particules d'aluminium Z600	100
3.8	Comparaison des valeurs de C_p à 23 ° C en fonction de la fraction volumique v_p pour les mesures faites en DSC, Nanoflash et déterminées par la loi des mélanges sur les échantillons de résine époxy LY556/D230 chargés de particules d'aluminium Z600	101
3.9	Mesures de C_p à 23 ° C des échantillons chargés de particules d'aluminium et de cuivre produits par l'ICA	102

3.10	Mesures de masse volumique, ρ , chaleur spécifique, C_p , diffusivité thermique, a et calculs du coefficient de conductivité thermique, λ , de nos différents échantillons en fonction de la fraction volumique des particules v_p , à 23 °C	106
3.11	Valeurs des paramètres déterminant la valeur de n pour $r_{moy} = 3.5 \mu m$	111
3.12	Valeurs des paramètres déterminant la valeur de n pour $r_{moy} = 4.9 \mu m$	111
3.13	Valeurs des paramètres déterminant la valeur de n pour $r_{moy} = 5 \mu m$	112
4.1	Caractéristiques thermiques de quelques fibres de carbone	123
4.2	Valeurs du coefficient de conductivité thermique longitudinal des modèles COM-SOL en fonction de la fraction volumique de fibres et des paramètres géométriques. La loi des mélanges est indépendante de la longueur L	125
4.3	Caractéristiques des fibres CN-90-60S (XN-90-60S) de chez Nippon Graphite Fibre	127
4.4	Mesure de la fraction volumique réelle de fibres de renfort UD par dissolution à l'acide	128
4.5	Mesures moyennes de diffusivité thermique du renfort UD par méthode flash	128
4.6	Mesures moyennes de la chaleur spécifique du renfort UD par DSC	129
4.7	Valeurs moyennes du coefficient de conductivité thermique transverse du renfort UD	129
4.8	Valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse des différents modèles en fonction de la fraction volumique de fibres et des paramètres géométriques (ST : modèle de Springer-Tsai, AC : modèle auto-cohérent, HT : modèle de Halpin-Tsai, HJ : modèle de Hasselman et Johnson, LN : modèle de Lewis-Nielsen)	131
4.9	Propriétés des tissus EWC-300X et EWC-600X données par le fournisseur CYTEC	133
4.10	Mesure de la fraction volumique réelle de fibres par dissolution à l'acide	138
4.11	Mesure de diffusivité thermique du taffetas par méthode flash	138
4.12	Mesure de diffusivité thermique du satin de 8 par méthode flash	139
4.13	Mesure de la chaleur spécifique du taffetas par DSC	139
4.14	Mesure de la chaleur spécifique du satin de 8 par DSC	139
4.15	Valeurs moyennes du coefficient de conductivité thermique transverse du taffetas	139
4.16	Valeurs moyennes du coefficient de conductivité thermique transverse du satin de 8	140
4.17	Valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse en fonction du rapport e_r/e_m obtenues par simulation ABAQUS	145
4.18	Valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse du modèle taffetas obtenues par ABAQUS en fonction du rapport e_r/e_m	148
4.19	Valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse du modèle taffetas obtenues par ABAQUS en fonction de la fraction volumique de particules de cuivre dispersées dans la matrice	148

Contexte industriel et objectifs de la thèse

CETTE thèse s'inscrit dans le cadre du projet FUI 10 THEOREM (THERmal ORganic Enhanced Materials) porté par THALES Systèmes Aéroportés. Ce projet est l'association de quatre industriels (THALES Systèmes Aéroportés, LATELEC, MIPNET, RESCOLL) et trois laboratoires (LCPO¹, CANOE et ICA²) des régions Aquitaine et Midi-Pyrénées, couvertes par le pôle Aerospace Valley. Ce projet vise à mettre en évidence le potentiel des composites dans des applications où la conduction thermique est nécessaire ainsi que de montrer les problématiques rencontrées.

La préoccupation principale des avionneurs a toujours été le gain de masse des différents équipements et structures permettant ainsi de diminuer la consommation de carburant et d'augmenter l'autonomie de vol ainsi que la charge transportable. Ainsi, après l'avènement de l'aluminium, la recherche s'est orientée sur le développement de nouveaux matériaux ayant les mêmes caractéristiques mécaniques que l'aluminium mais une densité plus faible ($d_{alu} = 2.7$). De ce fait les matériaux composites, essentiellement à fibres de carbone, se sont substitués peu à peu à l'aluminium. En 30 ans la part des matériaux composites n'a cessé d'augmenter passant de 5% à 50% tant chez Airbus que chez Boeing.

Les principaux freins à l'utilisation de matériaux composites sur certaines pièces sont :

- un manque de connaissance sur les modes de vieillissement et sur leur usinage
- une absence de conductivité électrique, ce qui implique un problème de continuité de masse avec le reste des pièces de structures métalliques.
- une conductivité thermique proche de zéro, ce qui implique un problème d'évacuation de la chaleur dégagée par les appareils électroniques. Cela a pour effet induit une augmentation de la température de fonctionnement donc une perte de fiabilité des composants et cartes électroniques. Cette absence de conductivité est généralement due à la conductivité thermique quasi nulle des matrices polymériques.

Un important travail de recherche a déjà été effectué afin d'obtenir des gains de masse intéressants sur les pièces les plus massives et sur des pièces structurales. Aujourd'hui la recherche se penche sur les équipements plus petits. Les applications de ce projet sont des équipements non structuraux qui ont vocation à être à la fois légers et dissipateurs thermiques, tels que des supports de composants électroniques, des boîtiers électriques, etc. L'objectif de ce projet

1. Laboratoire de Chimie des Polymères Organiques

2. Institut Clément Ader

est donc d'améliorer les propriétés thermiques de matériaux composites dans les trois directions de l'espace afin de pouvoir produire un drain thermique pouvant remplacer son équivalent métallique.

L'objectif de conductivité thermique recherché est donc d'atteindre les $300 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ de manière isotrope dans le matériau final, avec un coût global compatible avec le marché visé. Cela implique que les choix techniques et technologiques seront impactés par les aspects industrialisation et commercialisation propres à une production en moyenne série.

L'objectif final de ce projet est ainsi de développer un matériau hybride constitué d'une matrice polymère chargée avec des particules dopantes et renforcée par des fibres longues de carbone et ayant des propriétés thermiques dans l'espace proches de celles de l'aluminium. Pour définir les propriétés thermiques effectives de ce composite deux principaux axes ont été développés.

Le premier porte sur l'amélioration de la conductivité thermique de la matrice thermodurcissable par l'ajout de différents types de particules. Le deuxième concerne l'amélioration du transfert de chaleur du matériau global par l'ajout de renforts de fibres de carbone dans les trois directions de l'espace. Les propriétés homogénéisées de la matrice chargée sont ensuite utilisées à l'échelle mésoscopique en prenant en compte les modèles géométriques des renforts (Figure 1).

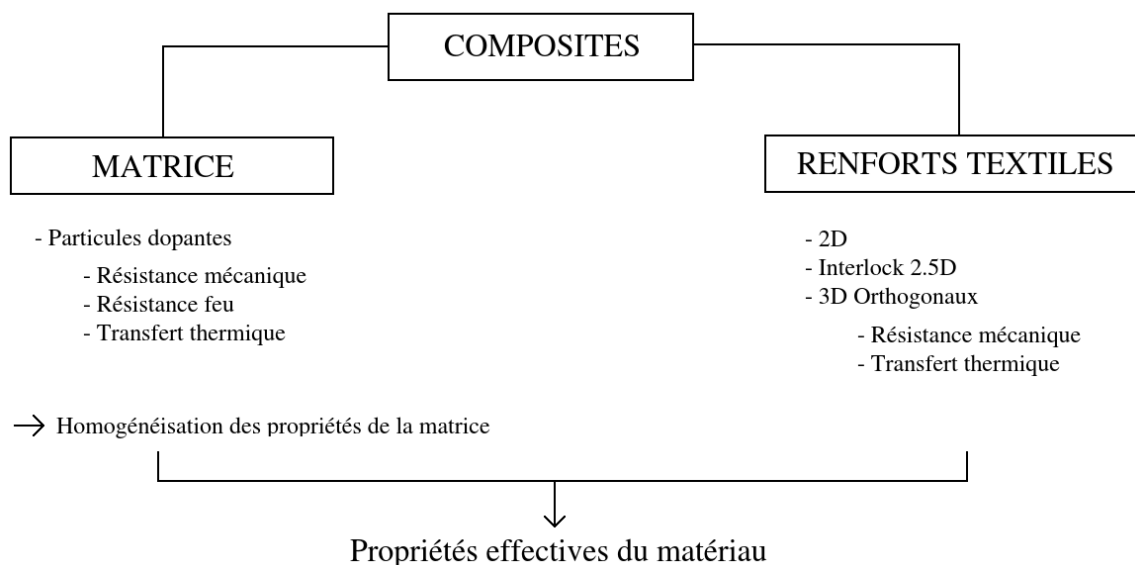


FIGURE 1 – Démarche suivie

THALES Systèmes Aéroportés et LATELEC sont les utilisateurs finaux de ce projet. Afin de répondre à leur cahier des charges le développement de ce nouveau matériau s'est fait en collaboration entre les différents partenaires (Figure 2).

Le LCPO, RESCOLL et CANOE (Groupe Matrice) sont en charge de l'élaboration des formulations de résines définies selon le type de matrice, le type de charges et la composition optimale du mélange ainsi que de l'évaluation des caractéristiques mécaniques, rhéologiques et thermiques et de l'aptitude à la mise en œuvre par injection ou imprégnation.

MIPNET est en charge du développement des architectures fibreuses (2D, 2.5D et 3D) et travaille en étroite collaboration avec le groupe Matrice afin de s'assurer de l'imprégnation à cœur des renforts. Enfin l'ICA a en charge tout l'aspect simulation avec la détermination à l'aide de modèles analytiques ou numériques de la conductivité thermique de l'ensemble des constituants élémentaires mis en œuvre dans le projet.

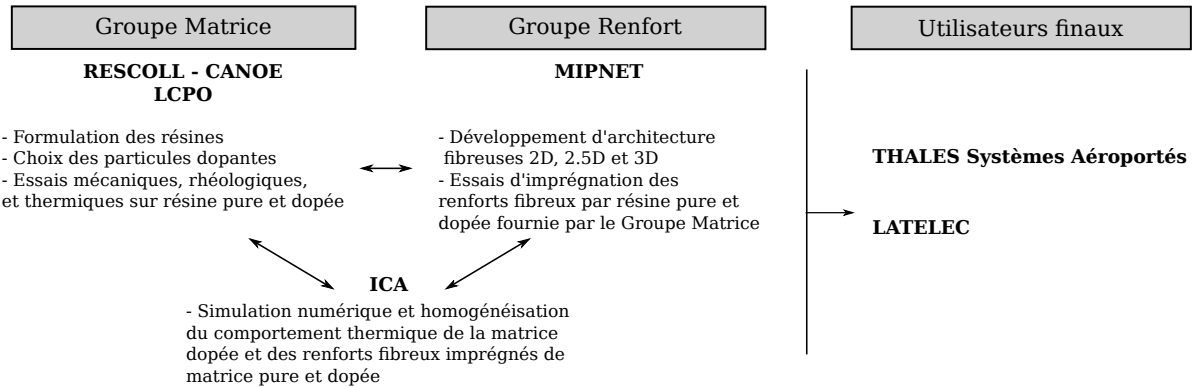


FIGURE 2 – Relations entre les différents partenaires du projet

La tâche de l'ICA dans ce projet n'est pas de développer les formulations de matrice dopée ou les architectures fibreuses. Ces tâches comme nous l'avons expliqué précédemment incombent à RESCOLL, CANOE et le LCPO pour le développement de matrices dopantes et à MIPNET pour le développement des architectures fibreuses.

Le premier chapitre présente l'état de l'art directement en lien avec les problématiques dont l'ICA a été chargé dans le projet THEOREM, à savoir :

- la simulation numérique du dopage des matrices et modèles de prédiction de leur conductivité thermique dans le but d'obtenir une conductivité thermique homogénéisée de la matrice.
- la simulation numérique de la conductivité thermique des composites et modèles associés pour différentes architectures de renforts fibreux.
- les validations expérimentales

Ce chapitre se focalise donc sur trois domaines : les modèles analytiques pouvant être utilisés dans le cas de matrice dopée, ceux pouvant être développés dans le cas de composites à renforts fibreux et enfin les différents moyens de mesures de conductivité thermique disponibles. Les différents modèles présentés seront analysés en fonction de leur utilisation possible pour répondre aux objectifs de cette thèse.

La modélisation de la matrice chargée est traitée dans le chapitre 2. Nous présentons le développement de modèles numériques permettant de déterminer les paramètres homogénéisés d'une matrice dopée par des particules de forme variable et réparties aléatoirement. Deux géométries de particules sont ainsi mises en avant : la sphère et l'ellipsoïde. Le modèle de dispersion de sphères fait l'objet d'une étude de sensibilité afin d'évaluer l'influence de différents paramètres sur le coefficient de conductivité thermique effectif de la matrice dopée. Les modèles numériques sont enfin corrélés avec des modèles analytiques de la littérature présentés dans le chapitre 1.

Le chapitre 3 expose la validation expérimentale de la modélisation décrite au chapitre 2. Il est ainsi présenté les différents constituants utilisés dans la fabrication des échantillons ainsi que les méthodes utilisées pour déterminer les différentes caractéristiques thermiques de ces échantillons. Enfin une comparaison est faite entre les modèles analytiques présentés au chapitre 1, les modèles numériques développés au chapitre 2 et les résultats expérimentaux ainsi obtenus.

Le chapitre 4 développe l'aspect renforts textiles et composite final du projet. Dans un premier temps, les renforts de type unidirectionnel (UD) sont abordés avec la caractérisation de leurs conductivités thermiques longitudinale et transverse, à l'aide de modèles numériques et analytiques. Des résultats expérimentaux sur la conductivité thermique transverse des matériaux composites à renforts fibreux sont également présentés. Dans un second temps, des renforts de type 2D sont étudiés. La caractérisation expérimentale de la conductivité thermique transverse est développée. Un dialogue entre la modélisation numérique et les résultats expérimentaux est mis en place afin d'optimiser au mieux les modèles. Enfin, l'intégration des paramètres matériaux homogénéisés de la matrice dopée, définis au chapitre 3, sont rapidement étudiés.

Une conclusion et quelques perspectives constituent la clôture de ce manuscrit.

Chapitre 1

Etat de l'art

Sommaire

1.1	Modélisation analytique de la matrice chargée	7
1.1.1	Modèles avec interface parfaite	8
1.1.1.1	Modèles du premier ordre	8
	Modèle des couches en série	9
	Modèle des couches en parallèle	10
1.1.1.2	Modèles du second ordre	11
	Modèle de Bruggeman	11
	Modèle de Hashin et Strikman	12
	Modèle de Hamilton-Crosser	12
	Modèle de Cheng-Vachon	13
1.1.1.3	Modèles du troisième ordre	15
	Modèle de Lewis-Nielsen	15
1.1.2	Modèles avec interface imparfaite	17
1.1.2.1	Modèles de Benveniste	17
1.1.2.2	Modèle de Hasselman et Johnson	21
1.2	Modélisation numérique de la matrice chargée	25
1.2.1	Distribution aléatoire de particules basée sur la méthode RSA	25
1.2.2	Distribution aléatoire de particules basée sur la dynamique moléculaire	26
1.3	Modélisation des renforts fibres longues	27
1.3.1	Unidirectionnels	28
1.3.1.1	Conductivité thermique longitudinale effective	28
1.3.1.2	Conductivité thermique transverse effective	28
	Modèle des couches en série	28
	Modèle de Springer-Tsai	29
	Modèle auto-cohérent	31
	Modèle de Halpin-Tsai	32
	Modèle de Lewis-Nielsen	33
	Modèle de Hasselman et Johnson	34
1.3.2	Renforts de type textiles 2D	35

1.3.2.1	Modèle de Dasgupta	36
1.3.2.2	Modèle de Ning et Chou	39
1.4	Méthodes de mesures	43
1.4.1	Source Plane Transitoire	43
1.4.2	Méthode Flash	45
1.5	Conclusion	48

A FIN d'améliorer la conductivité thermique d'un composite nous pouvons œuvrer soit sur les renforts soit sur la matrice soit sur les deux simultanément. De nombreuses études mettent en avant la différence de résultats entre les modèles analytiques ou numériques et les résultats expérimentaux.

Pour déterminer le coefficient de conductivité thermique d'un matériau hétérogène de façon analytique il est nécessaire de passer par une étape d'homogénéisation du matériau afin de définir les propriétés effectives du composite final. Notre matériau étant constitué, à terme, de renforts fibreux imprégnés d'une matrice chargée de particules nous avons définis trois phases d'homogénéisation :

- une première phase d'homogénéisation non périodique des propriétés de la matrice chargée de particules dopantes. Nous déterminerons ainsi les propriétés thermiques effectives de la matrice chargée.
- une deuxième phase d'homogénéisation périodique de la mèche (Unidirectionnel)
- une troisième phase d'homogénéisation périodique des propriétés du composite final en intégrant les propriétés thermiques effectives de la matrice chargée. Le composite restant anisotrope du point de vue thermique.

Ce chapitre propose donc un état de l'art des modèles analytiques existant dans la littérature pour définir le coefficient de conductivité thermique effectif de matériaux composites ainsi que des différentes méthodes de mesures de conductivité thermique de matériaux anisotropes. Dans un premier temps, une comparaison de différents modèles utilisés pour obtenir la valeur homogénéisée du coefficient de conductivité thermique effectif d'une matrice chargée de micro particules sera faite. Dans un deuxième temps, nous étudierons les modèles analytiques existant dans le cas de renforts tissés. Enfin nous ferons un point sur les différents moyens expérimentaux permettant de déterminer la valeur des conductivités thermiques longitudinale et transverse effectives d'un matériau composite.

Notre objectif étant de définir un matériau capable de dissiper de l'énergie calorifique en son sein nous nous sommes uniquement focalisés sur le cas d'un transfert thermique par conduction pure. Ainsi dans le cas de la conduction pure, à l'échelle moléculaire, la conductivité thermique dépend de deux types de mécanismes :

- un mécanisme de type électronique : ce mécanisme est basé sur le modèle cinétique des gaz parfaits et dépend donc du mouvement des porteurs de charges. C'est le phénomène que nous observons pour la conductivité électrique. Il est prédominant dans les métaux purs.
- un mécanisme de type vibratoire : ce mécanisme est dû à la vibration permanente des atomes autour de leur position d'équilibre. Il dépend donc de la structure même du matériau. Il est prédominant dans les matériaux isolants électriquement.

Nous constatons ainsi que la conductivité thermique d'un matériau peut être liée à la conductivité électrique. Nous verrons par la suite que nous pouvons considérer une certaine analogie entre les conductivités thermique et électrique.

1.1 Modélisation analytique de la matrice chargée

La modélisation du comportement thermique d'un composite (ici une matrice dopée par des charges conductrices) constitué de deux phases distinctes (une phase discontinue dispersée dans une phase continue) fait l'objet de nombreuses recherches depuis plus d'un siècle, comme en témoignent les travaux de Maxwell sur les transferts de chaleur dans les milieux hétérogènes dès 1873 [1]. De nombreux modèles surestiment ou sous-estiment la conductivité thermique des matériaux composites. La différence entre les modèles numériques, analytiques et les résultats expérimentaux peut s'expliquer, pour certains, par l'existence d'une résistance thermique de contact à l'interface des différents constituants du matériau composite. Cela est dû à la difficulté de modéliser la propagation de la chaleur dans des milieux hétérogènes. Cependant de nombreux modèles ont été développés s'approchant de plus en plus de résultats expérimentaux. Nous proposons ici d'établir un récapitulatif des modèles les plus usités pour la prédiction de la conductivité thermique des matériaux hétérogènes. Ces modèles peuvent être divisés en deux grandes familles :

- ceux qui considèrent que l'interface entre les différents constituants du matériau composite est parfaite, c'est-à-dire que le flux de chaleur se transmet donc entièrement d'un constituant à l'autre.
- ceux qui considèrent que cette interface est imparfaite. Dans ce cas il y a prise en compte dans les calculs d'une résistance thermique de contact entre les différents constituants du matériau. Une discontinuité de température apparaît entre les deux phases.

La définition, par un modèle, de la conductivité thermique d'un matériau isotrope homogène est assez simple de par le fait que la conductivité thermique du matériau, représentée par son coefficient λ , est constante dans les trois directions de l'espace et en tout point du matériau. Dans le cas d'un matériau composite, qui est anisotrope et hétérogène, nous pouvons observer des variations locales de la conductivité thermique dues à la présence d'au moins deux phases. La modélisation du comportement thermique devient alors plus problématique de par la différence des propriétés de chaque phase. Un matériau composite peut cependant être remplacé par un matériau homogène ayant les mêmes propriétés effectives que le matériau composite original.

La méthode de l'homogénéisation est un principe permettant de remplacer un milieu hétérogène par un milieu homogène équivalent. Le milieu homogène doit se comporter de la même façon que le milieu hétérogène pour des phénomènes mesurés sur une échelle supérieure à celle des hétérogénéités. Il faut ainsi définir un volume élémentaire représentatif (V.E.R.) du matériau considéré.

De nombreuses synthèses bibliographiques existent dans la littérature prouvant ainsi que le problème de la détermination de la conductivité thermique effective est largement étudié et qu'il n'existe pas forcément de solution unique [2, 3]. Les premiers travaux sur le transfert de chaleur

dans un milieu hétérogène avec un contact parfait entre les phases sont ceux de Maxwell en 1873 [1].

Le modèle de Maxwell a été dans un premier temps développé pour définir la conductivité électrique d'un milieu hétérogène constitué de sphères dispersées dans un milieu continu. Le développement de ce modèle a permis de déterminer l'expression de la conductivité thermique effective d'un milieu homogène équivalent tel que défini par l'équation(1.1) :

$$\lambda_e = \lambda_m \frac{2\lambda_m + \lambda_p - 2v_p(\lambda_m - \lambda_p)}{2\lambda_m + \lambda_p + v_p(\lambda_m - \lambda_p)} \quad (1.1)$$

λ_e représente la conductivité thermique effective du composite, λ_m , la conductivité thermique de la matrice, λ_p , la conductivité thermique des particules, v_p , la fraction volumique des particules.

Ce modèle n'est applicable que dans le cas de concentration de particules faible, c'est-à-dire que le gradient de température et donc le flux de chaleur ne sont pas influencés par la présence des particules. Nous mettons ainsi en évidence la principale limitation de ce modèle. Cependant il a été la base du développement de nouveaux modèles plus enrichis, prenant en compte plus de paramètres relatifs aux différentes phases en présence.

Dans l'étude bibliographique de Bigg et al. [2] les auteurs ont différencié les modèles en les classant en modèles de premier, second et troisième ordre. Les modèles du premier ordre ne font intervenir que la fraction volumique des particules et les coefficients de conductivité thermique des différentes phases. Les modèles du second ordre prennent en compte les perturbations entre les phases et la géométrie des inclusions. Les modèles du troisième ordre, quant à eux, comprennent en plus des perturbations entre phases et de la géométrie des particules, un terme relatif à la fonction statistique de répartition des charges dans le volume de la matrice.

Les modèles présentés par la suite se basent tous sur les hypothèses suivantes :

- les différentes phases sont macroscopiquement homogènes et isotropes
- les particules dopantes ont toutes la même forme et la même taille
- le matériau composite est constitué de deux phases non poreuses
- les transferts thermiques par convection et par rayonnement sont négligés (milieux non poreux et opaques)
- les particules sont considérées dispersées aléatoirement dans la matrice, donc strictement aucune périodicité sur les positions des particules dopantes

1.1.1 Modèles avec interface parfaite

Dans le cadre des modèles considérant une interface parfaite, les deux premiers modèles les plus connus et les plus basiques sont ceux définissant les bornes de Wiener. Ces modèles sont basés sur l'analogie électrique et la loi des mélanges [4]. Ce sont des modèles de premier ordre.

1.1.1.1 Modèles du premier ordre

Modèle des couches en série Le modèle des couches en série revient à exprimer la borne inférieure de Wiener. Ce modèle est représenté Figure 1.1a. La résistance thermique totale du composite R_T , de coefficient de conductivité thermique λ_e , d'épaisseur e et de surface S perpendiculaire au flux q , est :

$$R_T = R_1 + R_2 + R_3 \Leftrightarrow \frac{e}{S \cdot \lambda_e} = \frac{e_1}{S \cdot \lambda_1} + \frac{e_2}{S \cdot \lambda_2} + \frac{e_3}{S \cdot \lambda_3} \quad (1.2)$$

où e_1 , e_2 , e_3 sont les épaisseurs des différentes couches de résistances thermiques R_1, R_2, R_3 et de coefficients de conductivité thermique $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$.

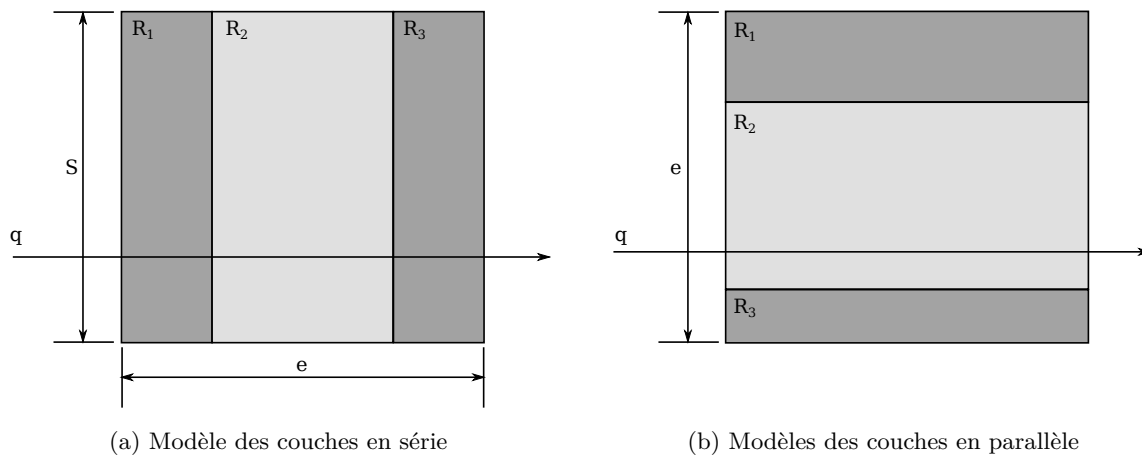


FIGURE 1.1 – Modèles basiques de matériaux multicouches

La conductivité thermique effective du composite est alors :

$$\lambda_e = \frac{1}{\frac{v_1}{\lambda_1} + \frac{v_2}{\lambda_2} + \frac{v_3}{\lambda_3}} \quad (1.3)$$

où v_1 , v_2 , v_3 sont les fractions volumiques des différentes couches.

Dans le cas d'un composite constitué d'une matrice de coefficient de conductivité thermique λ_m et d'une fraction volumique v_p de particules de coefficient de conductivité thermique λ_p l'équation(1.3) devient :

$$\lambda_c = \frac{1}{\frac{v_p}{\lambda_p} + \frac{(1 - v_p)}{\lambda_m}} \quad (1.4)$$

Ce modèle donne la limite basse (BWB) que peut atteindre le coefficient de conductivité thermique car il en sous-estime généralement la valeur. Ce modèle considère chaque particule comme une particule isolée. Il n'y a donc pas d'interaction entre les particules, ce qui a pour effet de minimiser l'effet de la phase dispersée sur le coefficient de conductivité thermique de la matrice et plus particulièrement à faible fraction volumique.

Modèle des couches en parallèle Le modèle des couches en parallèle revient quant à lui à exprimer la borne supérieure de Wiener. Ce modèle est représenté Figure 1.1b. La résistance thermique totale du composite R_T , de coefficient de conductivité thermique λ_e , d'épaisseur e et de surface S perpendiculaire au flux, est :

$$\frac{1}{R_T} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} + \frac{1}{R_3} \Leftrightarrow \frac{S \cdot \lambda_e}{e} = \frac{S_1 \cdot \lambda_1}{e} + \frac{S_2 \cdot \lambda_2}{e} + \frac{S_3 \cdot \lambda_3}{e} \quad (1.5)$$

où S_1, S_2, S_3 sont les surfaces perpendiculaires au flux de chaleur des différentes couches de résistances thermiques R_1, R_2, R_3 et de coefficients de conductivité thermique $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$. La conductivité thermique effective du composite est alors :

$$\lambda_e = v_1 \cdot \lambda_1 + v_2 \cdot \lambda_2 + v_3 \cdot \lambda_3 \quad (1.6)$$

Dans le cas d'un composite constitué d'une matrice de coefficient de conductivité thermique λ_m et d'une fraction volumique v_p de particules de coefficient de conductivité thermique λ_p l'équation(1.6) devient :

$$\lambda_e = v_p \cdot \lambda_p + (1 - v_p) \cdot \lambda_m \quad (1.7)$$

Ce modèle donne la limite haute (BWH) que peut atteindre le coefficient de conductivité thermique. La Figure 1.2 montre les résultats expérimentaux obtenus par Boudenne et al. en 2004 [5] sur des particules d'aluminium et par Kochetov et al. en 2010 [6] sur des particules d'alumine et de silice, et bornés par les bornes de Wiener. Boudenne a fait ses essais sur deux types de particules d'aluminium dispersées dans une matrice polypropylène : un premier lot Al1 avec un $d(50) = 7.83 \mu m$ et un deuxième lot Al2 avec un $d(50) = 49.91 \mu m$. Il a déterminé la valeur de la conductivité thermique de la matrice par expérimentation : $\lambda_m = 0.239 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ et la valeur de la conductivité thermique des particules a été prise constante à $\lambda_p = 237 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ (données *Goodfellow*).

Kochetov a, quant à lui, dispersé des particules d'alumine et de silice dans un système epoxy constitué d'une résine de type DGEBA et d'un durcisseur de type anhydride. Les particules d'alumine ont une taille moyenne de $4 \mu m$ tandis que les particules de silice ont une taille moyenne de $20 \mu m$. La valeur de la conductivité thermique des particules d'alumine est présumée varier entre 15 et $40 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ tandis que celle des particules de silice est présumée varier entre 1.3 et $10 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$. Kochetov a choisi des valeurs de $10 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ et $1.2 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ respectivement pour les particules d'alumine et de silice.

Ainsi nous constatons que le modèle des couches en parallèle qui correspond à la borne de Wiener haute (BWH) est fortement influencé par le composant mineur (ici les particules dopantes) contrairement au modèle des couches en série (borne de Wiener basse : BWB) qui est plutôt influencé par le composant majeur (ici la matrice).

Ces deux modèles sont très simples et permettent de définir en première approximation le domaine d'évolution de la conductivité thermique des composites, c'est-à-dire les valeurs minimales et maximales que la conductivité thermique d'un composite pourrait atteindre.

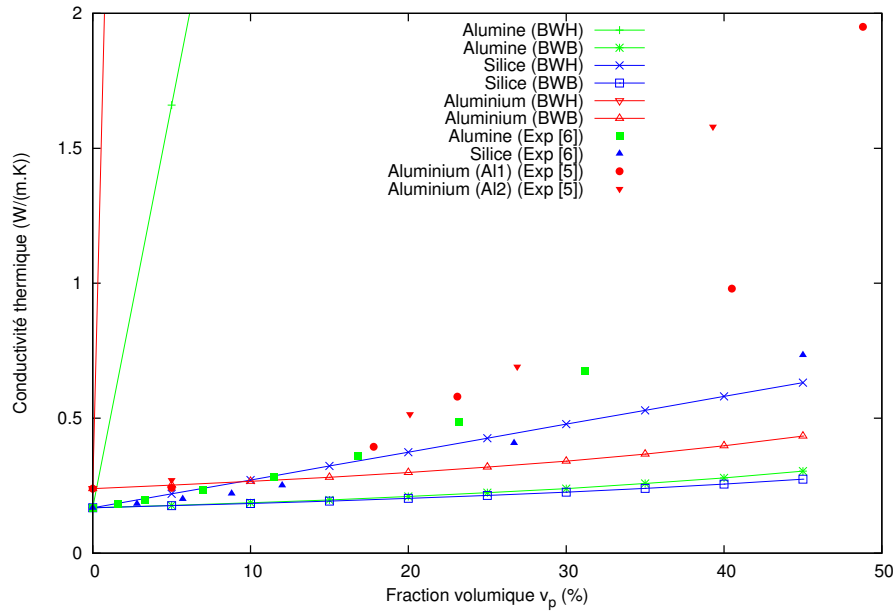


FIGURE 1.2 – Comparaison de données expérimentales de la littérature [5, 6] avec les bornes de Wiener

Les bornes de Wiener sont généralement utilisées dans le cas de matériaux composites constitués de renforts fibreux comme nous le verrons par la suite. Cependant ces modèles ne tiennent absolument pas compte de la forme, de la taille, et de la répartition de la phase discontinue dans la phase continue. En effet, si nous regardons les résultats de Boudenne sur la Figure 1.2, nous remarquons qu'il a utilisé deux types de particules d'aluminium avec un facteur de taille d'environ 6 entre les deux. Or les bornes de Wiener sont les mêmes pour les deux types de particules car ces modèles ne tiennent pas compte de la taille des particules.

Afin de pouvoir étudier l'influence de la taille des particules sur la valeur du coefficient de conductivité thermique nous allons étudier des modèles plus complets.

1.1.1.2 Modèles du second ordre

La particularité des modèles du second ordre par rapport à ceux du premier ordre est qu'ils prennent en compte en plus la géométrie des charges.

Modèle de Bruggeman Le modèle de Bruggeman [2,3,5,7–9], défini par l'équation(1.8), est une évolution du modèle de Maxwell présenté dans l'équation(1.1).

$$1 - v_p = \frac{\lambda_c - \lambda_p}{\lambda_m - \lambda_p} \left(\frac{\lambda_m}{\lambda_c} \right)^{\left(\frac{1}{1+x} \right)} \quad (1.8)$$

Il introduit un facteur dépendant de la géométrie des particules, le facteur x . Dans le cas de particules sphériques, x est défini égal à 2 et dans le cas de particules cylindriques il est défini égal à 1. Ce modèle considère les particules isolées les unes par rapport aux autres, c'est-à-dire pour de faibles fractions volumiques. Bruggeman donne un seuil de validité du modèle

pour une fraction volumique de 33% qui correspondrait au seuil de percolation. Le principe de seuil de percolation est présent dans le cas de la conductivité électrique. Dans le cas de la conductivité thermique nous n'avons retrouvé ce phénomène que dans le cas de températures cryogéniques [10]. Notre étude ne se faisant pas à ces températures, ce modèle ne sera pas utilisé.

Modèle de Hashin et Strikman Hashin et Strikman [2,9] ont également défini deux modèles définissant des limites haute et basse de la valeur de la conductivité thermique. La limite haute est définie par l'équation(1.9) tandis que la limite basse est définie par l'équation(1.10). Ces modèles ont été développés en considérant des particules isolées donc des composites particulaires présentant de faibles fractions volumiques de charges.

$$\lambda_c = \frac{\lambda_p [1 + (d-1)(1-v_p)b]}{1 - (1-v_p)b} \quad (1.9)$$

$$\lambda_c = \lambda_m \frac{1 + v_p\beta(d-1)}{1 - v_p\beta} \quad (1.10)$$

$$\text{avec } b = \frac{\lambda_m - \lambda_p}{\lambda_m + (d-1)\lambda_p} \quad \text{et} \quad \beta = \frac{\lambda_p - \lambda_m}{\lambda_p + (d-1)\lambda_m}$$

d est le paramètre faisant intervenir la morphologie des particules. Dans le cas de particules sphérique $d = 3$. Nous n'avons pas trouvé d'informations dans la littérature pour d'autres formes de particules.

Le modèle définissant la limite supérieure est seulement utilisé dans le cas où les conductivités thermiques des deux phases sont similaires. Dans notre cas, généralement, la conductivité thermique des particules est très supérieure à celle de la matrice. Ce modèle ne s'applique donc pas à notre étude.

Quant au modèle définissant la limite inférieure il donne des résultats supérieurs au modèle de la borne inférieure de Wiener comme montré dans la Figure 1.3 dans le cas de particules d'aluminium tel que défini précédemment.

Modèle de Hamilton-Crosser Le modèle de Hamilton et Crosser [2,3,11] définit par l'équation(1.11) fait intervenir une constante empirique n . Cette constante prend en compte la morphologie des particules. Il a été constaté que si le rapport des conductivités des deux phases en présence, λ_p/λ_m , est supérieure à 100, la constante n est définie par l'équation(1.12) sinon $n = 3$.

$$\lambda_c = \lambda_m \left[\frac{\lambda_p + (n-1)\lambda_m - (n-1)v_p(\lambda_m - \lambda_p)}{\lambda_p + (n-1)\lambda_m + v_p(\lambda_m - \lambda_p)} \right] \quad (1.11)$$

$$n = \frac{3}{\psi} \quad (1.12)$$

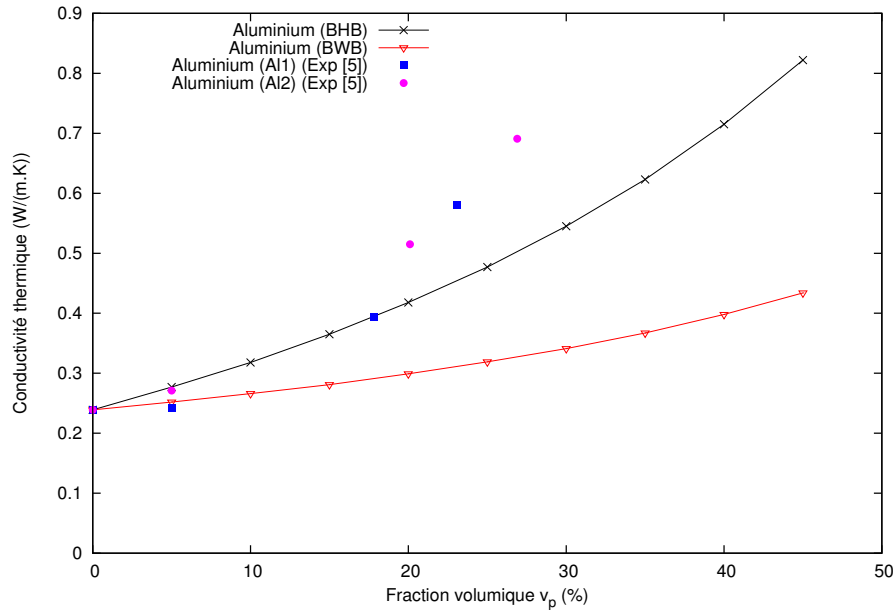


FIGURE 1.3 – Comparaison entre les limites inférieures de Wiener (BWB) et de Hashin et Strikman (BHB)

L'équation(1.12) fait intervenir le paramètre ψ , qui correspond à la sphéricité de la particule. Elle est définie comme le rapport de la surface d'une sphère ayant un volume égal à celui de la particule sur la surface réelle de la particule. Ainsi, si la particule est une sphère, $\psi = 1$, par contre plus la forme de la particule s'éloigne de celle d'une sphère plus ψ diminue. En effet, Hamilton et Crosser [11] donnent pour exemple des particules de balsa qui sont soit en forme de disque soit en forme de cube. Pour des disques de rayon 7.2 mm et d'épaisseur 0.8 , la sphéricité des particules est estimée à 0.5 tandis que pour des cubes de dimensions $0.8 \times 0.8 \text{ mm}$, la sphéricité est estimée à 0.8 . Hamilton et Crosser ont montré, Figure 1.4, l'évolution de la conductivité thermique en fonction de la sphéricité des particules, pour des particules sphériques, parallélépipédiques et cylindriques avec différents facteurs de forme. Ils ont ainsi constaté que plus la sphéricité de la particule s'approche de 1 (donc d'une sphère) plus la conductivité thermique diminue. Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que les formes de particules variant, leur surface d'échange thermique varie aussi et a donc une influence sur la conductivité thermique effective du composite.

Modèle de Cheng-Vachon Le modèle de Cheng et Vachon [3, 7, 12] est dérivé du modèle de Tsao [13]. Tsao a défini une équation reliant la conduction d'un mélange de deux phases à deux paramètres déterminés expérimentalement qui décrivent la distribution spatiale des deux phases. Cheng et Vachon ont dérivé ce modèle en posant une distribution parabolique de la phase discrète (les particules) dans la phase continue (la matrice).

Dans le cas où le coefficient de conductivité thermique de la phase continue est supérieur à celui de la phase discontinue ($\lambda_m > \lambda_p$) le modèle de Cheng et Vachon est défini par l'équation(1.13).

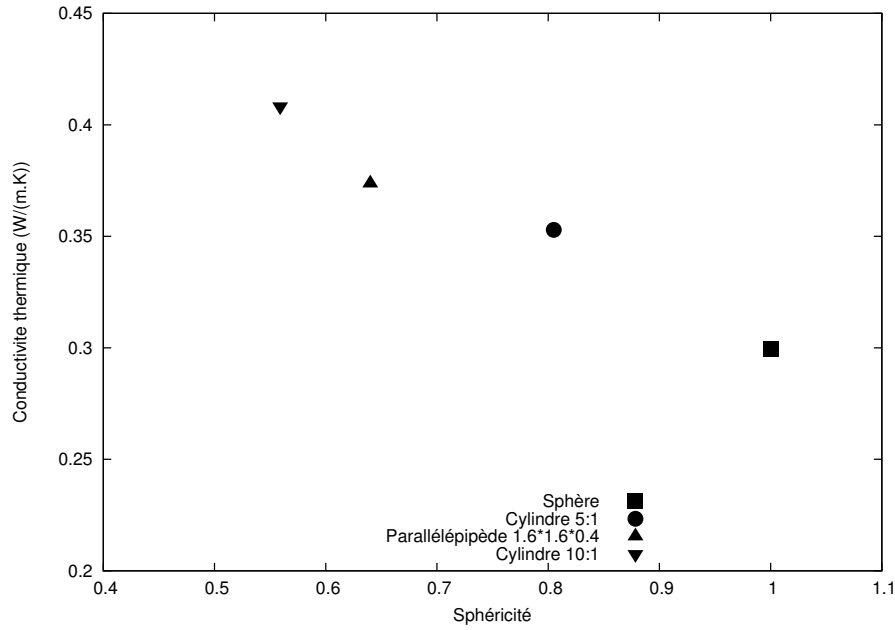


FIGURE 1.4 – Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la sphéricité des particules pour le modèle de Hamilton et Crosser [11]

$$\frac{1}{\lambda_e} = \frac{2}{\{C(\lambda_p - \lambda_m)[\lambda_m + B(\lambda_p - \lambda_m)]\}^{1/2}} \tan^{-1} \frac{B}{2} \left\{ \frac{C(\lambda_p - \lambda_m)}{\lambda_m + B(\lambda_p - \lambda_m)} \right\}^{1/2} + \frac{1 - B}{\lambda_m} \quad (1.13)$$

Et dans le cas où le coefficient de conductivité thermique de la phase discontinue est supérieure à celui de la phase continue ($\lambda_p > \lambda_m$) le modèle de Cheng et Vachon est défini par l'équation(1.14) :

$$\frac{1}{\lambda_e} = \frac{1}{\{C(\lambda_p - \lambda_m)[\lambda_m + B(\lambda_p - \lambda_m)]\}^{1/2}} \ln \frac{[\lambda_m + B(\lambda_p - \lambda_m)]^{1/2} + \frac{B}{2} [C(\lambda_m - \lambda_p)]^{1/2}}{[\lambda_m + B(\lambda_p - \lambda_m)]^{1/2} - \frac{B}{2} [C(\lambda_m - \lambda_p)]^{1/2}} \quad (1.14)$$

$$\text{avec pour les deux cas } B = \left(\frac{3v_p}{2}\right)^{1/2} \text{ et } C = -4 \left(\frac{2v_p}{3}\right)^{1/2}$$

En général, dans le cas de matrice dopée, le coefficient de conductivité thermique des particules est supérieur à celui de la matrice donc seule l'équation(1.14) s'applique.

En 1972, Sundstrom et al. [7] ont comparé les modèles de Cheng et Vachon, Bruggeman et Maxwell sur différents types de composites : des matrices polystyrène et polyéthylène chargées avec des particules d'alumine, de verre ou d'oxyde de magnésium. Les auteurs ont mis en évidence qu'en fonction du type de particules et de matrice, la valeur de la conductivité thermique effective du composite en fonction de la fraction volumique de particules n'évolue pas de la même manière. Il est donc difficile de dire quel modèle est meilleur que l'autre étant donné qu'en fonction du type de composite étudié cela varie.

1.1.1.3 Modèles du troisième ordre

Les modèles du troisième ordre quant à eux font intervenir différents paramètres fonction de la taille, de la forme et de la distribution des particules dans la matrice.

Modèle de Lewis-Nielsen Lewis et Nielsen [14] ont, dans un premier temps, adapté le modèle micro mécanique de Halpin-Tsai pour inclure les effets de la forme des particules, de leur orientation et de leur distribution. Ils ont ensuite étendu l'étude au comportement thermique des composites [2, 3, 8, 15]. Leur modèle est défini par l'équation(1.15).

$$\lambda_c = \lambda_m \left(\frac{1 + ABv_p}{1 - Bv_p\psi} \right) \quad (1.15)$$

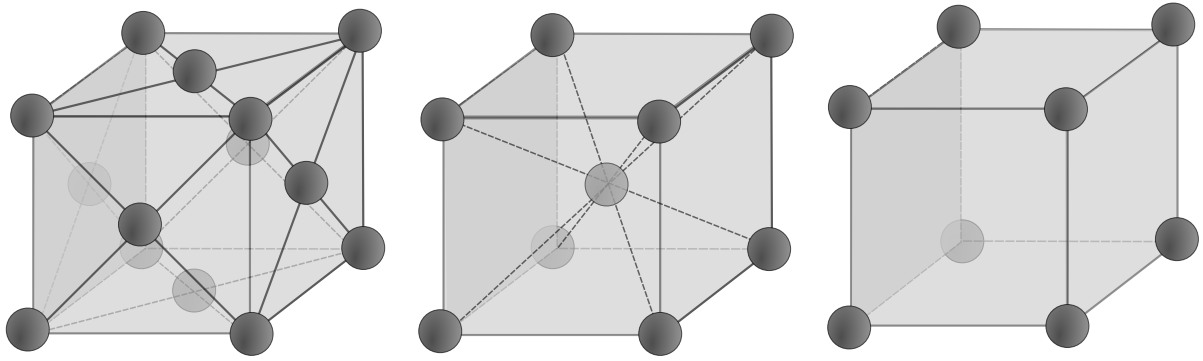
$$\text{avec } B = \frac{\frac{\lambda_p}{\lambda_m} - 1}{\frac{\lambda_p}{\lambda_m} + A} \quad \text{et} \quad \psi = 1 + \left(\frac{1 - \phi_m}{\phi_m^2} \right)$$

Le paramètre ϕ_m représente la distribution des particules les unes par rapport aux autres. Les différentes valeurs de ϕ_m sont classées dans le tableau 1.1 [2, 3]. ϕ_m a pour effet d'amplifier les effets de concentration à haute fraction volumique de particules. En effet, quand la fraction volumique de particules $v_p \rightarrow \phi_m$, la conductivité thermique $\lambda \rightarrow \infty$.

Type de particules dispersées	Distribution (Figure 1.5)	ϕ_m
Sphères	Hexagonal	0.7405
Sphères	Cubique faces centrées	0.7405
Sphères	Cubique centré	0.68
Sphères	Cubique	0.524
Sphères	Aléatoire	0.637
Flocons	Aléatoire	0.38-0.56
Cylindres	Aléatoire	0.52

TABLEAU 1.1 – Fraction volumique maximum ϕ_m en fonction de la forme des particules et de leur distribution [2, 3]

Le paramètre A , défini par l'équation(1.16), permet de prendre en compte l'orientation des particules les unes par rapport aux autres. Il est défini comme étant fonction de la constante généralisée de Einstein k_E . Cette constante, définie par l'équation(1.17), issue des travaux d'Einstein sur la rhéologie des suspensions, fait intervenir la viscosité de la matrice pure et celle de la



(a) Représentation de la distribution cubique faces centrées (b) Représentation de la distribution cubique centré (c) Représentation de la distribution cubique

FIGURE 1.5 – Représentations géométriques des différentes distributions

matrice chargée. Nous constatons ainsi que A tendant vers 0 correspond à une particule ayant un faible facteur de forme alors que A tendant vers ∞ correspond à une particule ayant un grand facteur de forme. De plus, quand $A \rightarrow \infty$ et $\phi_m = 1$, l'équation(1.15) revient à la loi des mélanges définie par l'équation(1.6) et inversement quand $A \rightarrow 0$ et $\phi_m = 1$, l'équation(1.15) revient à l'inverse de la loi des mélanges définie par l'équation(1.3). Le cas $\phi_m = 1$ indique que nous pouvons disperser jusqu'à 100% de particules dans la matrice. Ce n'est donc qu'un cas théorique qui ne peut exister dans la réalité. En effet, l'arrangement le plus compact possible de particules dans un cube de matrice ne peut dépasser les 74% en volume pour des particules sphériques de même volume. La fraction volumique, v_p , peut aller au-delà si nous avons des particules de différents volumes.

Les différentes valeurs de A , telles que définies par Lewis et Nielsen, sont classées dans le tableau 1.2 [2,3].

$$A = k_E - 1 \quad (1.16)$$

$$\frac{\eta}{\eta_0} = 1 + k_E v_p \quad (1.17)$$

En 2008, Pal [8] a considéré que le modèle de Lewis et Nielsen était supérieur à d'autres modèles tels que celui de Bruggeman ou de Maxwell car il décrit une relation explicite et définit le bon comportement thermique, à savoir que quand $v_p \rightarrow \phi_m$ et $\lambda_p/\lambda_m \rightarrow \infty$, la conductivité thermique effective du matériau $\lambda_c \rightarrow \infty$. Cependant l'auteur considère que dans le cas de particules sphériques réparties aléatoirement dans la matrice, le paramètre A devrait être égal à 2 plutôt que 1.5, car dans le cas où $\phi_m = 1$, le modèle de Lewis et Nielsen revient à celui de Maxwell. La justification de cette modification n'est pas évidente et si nous regardons les

Types de particules dispersées	A
Cubes	2.0
Sphères	1.50
Cylindres aléatoires (<i>facteur de forme</i> = 2)	1.58
Cylindres aléatoires (<i>facteur de forme</i> = 4)	2.08
Cylindres aléatoires (<i>facteur de forme</i> = 6)	2.88
Cylindres aléatoires (<i>facteur de forme</i> = 10)	4.93
Cylindres aléatoires (<i>facteur de forme</i> = 15)	8.38

TABLEAU 1.2 – Valeurs du paramètre A pour différentes formes et distributions de particules

différentes valeurs de A telles que définies par Lewis et Nielsen dans le tableau 1.2 une valeur de 2 correspond à des particules cubiques. Il serait nécessaire ici de comparer les différentes valeurs de A avec des données expérimentales, or nous n'avons pas trouvé de comparaison dans la littérature.

1.1.2 Modèles avec interface imparfaite

Les modèles présentés section 1.1.1 considèrent une interface parfaite entre les constituants, autrement dit un contact parfait entre les inclusions et la matrice. Il a été mis en évidence que ces modèles ne définissaient pas forcément bien le comportement thermique des matériaux composites étudiés, car ils ne reflètent pas la réalité du contact entre les particules et la matrice [16–18]. L'influence de l'interface entre les constituants sur la distribution de température dans un premier temps et sur le coefficient de conductivité thermique dans un second temps, a rapidement été mise en évidence. En effet, en 1941, Kapitza [19] met en évidence une discontinuité de température à l'interface entre un solide et de l'hélium superfluide He II. En 1959, Little [20] généralise la théorie dans le cas d'une interface entre deux matériaux solides. Mais ce n'est que dans les années 80, que des études théoriques prenant en compte la résistance de Kapitza dans la détermination de la conductivité thermique effective des matériaux composites, notamment avec les travaux de Benveniste et Miloh [16, 17] et de Hasselman et Johnson [18], sont publiées.

1.1.2.1 Modèles de Benveniste

Benveniste et Miloh [16] ont développé un modèle dans le cas d'une matrice faiblement chargée en particules. Ils ont défini 3 cas :

- un composite avec des sphéroïdes allongés alignés

- un composite avec des sphéroïdes aplatis alignés
- un composite avec des sphéroïdes allongés ou aplatis et orientés aléatoirement

Les deux premiers cas sont considérés isotropes transverses, ils ont donc deux conductivités thermiques effectives : une parallèle à l'axe de symétrie des inclusions (cas longitudinal) et une perpendiculaire à l'axe de symétrie (cas transverse). Le dernier cas est quant à lui considéré isotrope et est déduit des deux précédents cas.

Ce modèle se place dans le cas dilué, c'est-à-dire que les particules sont suffisamment éloignées les unes des autres pour négliger les interactions entre elles.

a) Cas longitudinal

- Cas de sphéroïdes allongés

$$\lambda_l = \lambda_m [1 + v_p (1 + \lambda B_1) f(\xi_0)] \quad (1.18)$$

$$\text{avec } f(\xi_0) = \left[\frac{1}{2} \xi_0 (\xi_0^2 - 1) \ln \left(\frac{\xi_0 + 1}{\xi_0 - 1} \right) - \xi_0^2 \right]^{-1} \quad \text{et} \quad \lambda = \frac{\lambda_p}{\lambda_m}$$

avec ξ_0 l'inverse de l'excentricité du sphéroïde et v_p la fraction volumique des particules.

- Cas de sphéroïdes aplatis

$$\lambda_l = \lambda_m [1 + v_p (1 + \lambda B_1 f(i\xi_0))] \quad (1.19)$$

$$\text{avec } f(i\xi_0) = - \left[\xi_0 (\xi_0^2 + 1) \cot^{-1} \xi_0 - \xi_0^2 \right]^{-1}$$

Le paramètre B_1 est fonction du type d'interface particule/matrice.

Si, dans un premier temps, nous considérons une interface parfaite c'est-à-dire qu'il y a continuité de température à l'interface particule/matrice, la paramètre B_1 s'exprime suivant l'équation(1.20) :

$$B_1 = - \left[1 - (1 - \lambda) (\xi_0^2 - 1) Q_1(\xi_0) \right]^{-1} \quad (1.20)$$

Les équations(1.18) et (1.19) deviennent donc :

$$\lambda_l = \lambda_m \left[1 - \frac{v_p (1 - \lambda)}{1 - (1 - \lambda) (\xi_0^2 - 1) Q_1(\xi_0)} \right] \quad (1.21)$$

$$\text{avec } Q_1(\xi_0) = \frac{\xi_0}{2} \ln \left(\frac{\xi_0 + 1}{\xi_0 - 1} \right) - 1$$

$$\lambda_l = \lambda_m \left[1 - \frac{v_p (1 - \lambda)}{1 - (1 - \lambda) (\xi_0^2 + 1) (1 - \xi_0 \cot^{-1} \xi_0)} \right] \quad (1.22)$$

b) Cas transverse

- Cas de sphéroïdes allongés

$$\lambda_t = \lambda_m [1 + v_p (1 + \lambda D_1) g(\xi_0)] \quad (1.23)$$

$$\text{avec } g(\xi_0) = -2 \left[\frac{\xi_0}{2} (\xi_0^2 - 1) \ln \left(\frac{\xi_0 + 1}{\xi_0 - 1} \right) - \xi_0^2 + 2 \right]^{-1}$$

– Cas de sphéroïdes aplatis

$$\lambda_t = \lambda_m [1 + v_p (1 + \lambda D_1) g(i\xi_0)] \quad (1.24)$$

$$\text{avec } g(i\xi_0) = -2 \left[-\xi_0 (\xi_0^2 + 1) \cot^{-1} \xi_0 + 2 + \xi_0^2 \right]^{-1}$$

Le paramètre D_1 est fonction du type d'interface particule/matrice.

Si, dans un premier temps, nous considérons une interface parfaite, c'est-à-dire qu'il y a continuité de température à l'interface particule/matrice, le paramètre D_1 s'exprime suivant l'équation(1.25) :

$$D_1 = \frac{-2}{2 + \xi_0 (1 - \lambda) (\xi_0^2 - 1)^{1/2} Q_1^1(\xi_0)} \quad (1.25)$$

Les équations(1.23) et (1.24) deviennent donc :

$$\lambda_t = \lambda_m \left[1 - \frac{v_p (1 - \lambda)}{1 + \frac{\xi_0}{2} (1 - \lambda) (\xi_0^2 - 1)^{1/2} Q_1^1(\xi_0)} \right] \quad (1.26)$$

$$Q_1^1 = \frac{1}{2} (\xi_0^2 - 1)^{1/2} \ln \left(\frac{\xi_0 + 1}{\xi_0 - 1} \right) - \frac{\xi_0}{(\xi_0^2 - 1)^{1/2}}$$

$$\lambda_t = \lambda_m \left[1 - \frac{v_p (1 - \lambda)}{1 - \frac{\xi_0}{2} (1 - \lambda) (\xi_0^2 + 1) \left[\cot^{-1} \xi_0 - \left(\frac{\xi_0}{1 + \xi_0^2} \right) \right]} \right] \quad (1.27)$$

Ces cas ont aussi été dérivés pour des particules sphériques de rayon a . Dans ce cas $\xi_0 \rightarrow \infty$ et $Q_1(\xi_0) \rightarrow \frac{1}{3}\xi_0^2$ et les équations(1.18), (1.19), (1.23) et (1.24) aboutissent à l'équation(1.28) :

$$\lambda_c = \lambda_m \left[1 - \frac{3v_p(1 - \lambda)}{2 + \lambda} \right] \quad (1.28)$$

En effet dans le cas de particules sphériques la conductivité thermique est isotrope.

Le cas considérant une interface particule/matrice imparfaite n'a été développé que pour des particules sphériques. Une interface imparfaite implique qu'il y a une discontinuité de température à l'interface, l'équation(1.28) devient donc :

$$\lambda_c = \lambda_m \left[1 - 3v_p \frac{1 - \lambda + \frac{\lambda_m}{\beta a}}{2 + \lambda + \frac{2\lambda_m}{\beta a}} \right] \quad (1.29)$$

β représente la résistance thermique d'interface. Quand $\beta \rightarrow 0$ cela correspond à une condition aux limites adiabatiques tandis que quand $\beta \rightarrow \infty$ cela correspond à une résistance thermique nulle. Les cas intermédiaires entre ces deux extrêmes correspondent

à une différence de température finie à l'interface particules/matrice et implique donc une résistance thermique d'interface.

Benveniste et Miloh [16] ont développé ces modèles en considérant que les particules sont orientées soient parallèlement soit perpendiculairement au flux de chaleur. Le problème est que les particules sont généralement réparties aléatoirement dans la matrice et ne sont donc pas alignées les unes par rapport aux autres. De plus, ces modèles ne sont valables que pour des cas où nous pouvons considérer que les particules n'interagissent pas entre elles donc pour des fractions volumiques de particules faibles, ce qui est à la limite de notre étude.

c) Distribution aléatoire

Benveniste et Miloh ont cependant défini un modèle, donné par l'équation(1.30) considérant des particules sphéroïdales allongées ou aplaties réparties aléatoirement dans une matrice isotrope. Le comportement effectif de ce composite peut être considéré comme isotrope également.

$$\lambda_c = \frac{2}{3}\lambda_t + \frac{1}{3}\lambda_l \quad (1.30)$$

La conductivité thermique effective du composite est ici définie en fonction des conductivités thermiques longitudinale et transverse définies dans les cas précédents. Cependant il n'est pas clairement dit quelle expression est choisie entre des sphéroïdes allongés ou aplatés. Ce modèle est donc difficilement exploitable par la suite.

Benveniste [17] a également développé un modèle pour des cas plus fortement chargés. Ce modèle a été développé pour des particules sphériques dispersées aléatoirement dans le composite. Il a généralisé deux méthodes, utilisées généralement dans le cas d'une interface particules / matrice parfaite, pour prendre en compte les effets de la résistance thermique de contact : la méthode auto-cohérente (développée dans un premier temps par Kerner [21]) et la méthode de Mori-Tanaka [22].

La méthode auto-cohérente considère le composite comme une particule entourée de matrice, l'ensemble étant entouré d'un milieu homogène équivalent. (Figure 1.6).

La fraction volumique de particules est définie telle que $a^3/b^3 = v_p$, où a est le rayon de la particule et b le rayon extérieur de la matrice entourant la particule. La notion de résistance thermique d'interface est introduite par le paramètre $\tilde{\beta}$.

$$\lambda_c = \lambda_m \frac{2(1 - v_p) + \tilde{\beta} [(1 + 2v_p) + (1/\lambda)(2 - 2v_p)]}{(2 + v_p) + \tilde{\beta} [(1 - v_p) + (1/\lambda)(2 + v_p)]} \quad (1.31)$$

$$\text{avec } \tilde{\beta} = \frac{\beta a}{\lambda_m} \quad \text{et} \quad \lambda = \frac{\lambda_p}{\lambda_m}$$

Ce modèle n'est valide que pour des particules sphériques de même dimension et dont la fraction volumique est inférieure à $\pi/6$ ($\cong 0.52$).

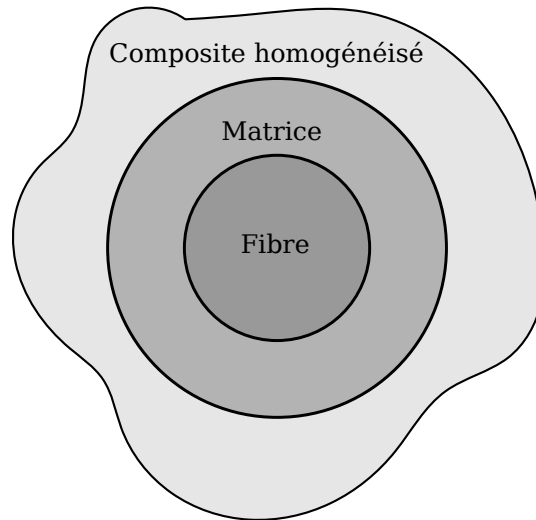


FIGURE 1.6 – Modèle auto-cohérent

La méthode de Mori-Tanaka a été développée pour l'étude des propriétés mécaniques de composites ayant une interface particules/matrice parfaite. Elle a été ici appliquée pour résoudre le problème de la détermination de la conductivité thermique de composites particuliers.

Benveniste a montré que le développement des deux méthodes revenait au même résultat exprimé par l'équation(1.31). Il a cependant mis en évidence que cette coïncidence n'existe que dans le cas où $a^3/b^3 = v_p$ et a priori que dans le cas de particules sphériques.

Dans ces modèles l'influence de la résistance thermique d'interface est étudiée à travers le paramètre β . Cependant il n'est donné aucune information sur la valeur que peut atteindre cette résistance. Est-elle fonction de l'épaisseur de matrice autour de la particule, du type de matériaux en contact ? Aucune information n'est donnée non plus pour évaluer cette résistance et ces points devront être éclaircis par la suite. Toutefois, étant donné que dans les travaux du consortium du projet THEOREM aucun partenaire n'est censé mesurer des résistances de contact, nous n'utiliserons pas ce type de modèle.

1.1.2.2 Modèle de Hasselman et Johnson

Le modèle de Hasselman et Johnson [18] définit la conductivité thermique effective du composite en prenant en compte le comportement à l'interface particules/matrice, la taille des particules ainsi que leur distribution géométrique dans la matrice. Ce modèle est valide dans le cas de fractions volumiques faibles, permettant ainsi de considérer qu'il n'y a aucune interaction entre les champs locaux de température des particules voisines. Ici la résistance thermique d'interface, R_c , est définie en terme de conductance thermique, h_c (soit l'inverse de la résistance thermique d'interface). Ce modèle a été développé pour trois cas :

- la dispersion aléatoire de particules sphériques
- la dispersion de particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur
- la dispersion de particules de type flocons orientées perpendiculairement au flux de chaleur

Les différentes formes de particules peuvent potentiellement correspondre à des charges que les partenaires de notre projet pourraient utiliser. En effet, les particules de graphite peuvent s'approcher de particules cylindriques, les particules de type feuillets de graphène sont proches de particules de type flocons, enfin des particules d'aluminium sont proches de particules sphériques.

a) Cas de particules sphériques dispersées aléatoirement

Dans ce cas, la conductivité thermique effective du composite λ_e est définie par l'équation(1.32) en fonction des conductivités thermiques de la matrice et des particules (λ_m et λ_p) ainsi que du rayon des sphères, a , et de la conductance de l'interface particules/matrice, h_c . Le développement de ce modèle suit l'approche de Maxwell. En effet, si nous considérons une interface parfaite donc que la résistance thermique d'interface $R_c \rightarrow 0$ et donc que la conductance $h_c \rightarrow \infty$ nous retrouvons l'équation de Maxwell définie par l'équation(1.1).

$$\lambda_e = \lambda_m \frac{2 \left(\lambda - \frac{\lambda_p}{ah_c} - 1 \right) v_p + \lambda + \frac{2\lambda_p}{ah_c} + 2}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_p}{ah_c} \right) v_p + \lambda + \frac{2\lambda_p}{ah_c} + 2} \quad (1.32)$$

avec $\lambda = \frac{\lambda_p}{\lambda_m}$

La Figure 1.7 montre l'influence de trois paramètres sur ce modèle : la conductance h_c , le rapport des conductivités λ , et la taille des particules avec le rayon a .

Nous constatons que la taille des particules n'a finalement pas de réelle influence sur la conductivité thermique relative du composite (Figure 1.7a). De même que le rapport des conductivités λ (Figure 1.7b). Cependant nous pouvons relever que plus ce rapport augmente, c'est-à-dire que la conductivité thermique des particules, λ_p , devient grande devant la conductivité thermique de la matrice, λ_m , plus la conductivité thermique relative du composite augmente. De plus, à partir d'un rapport de conductivité $\lambda = 500$, la conductivité thermique relative n'évolue plus.

Le paramètre qui influence le plus la conductivité thermique relative du composite est la conductance h_c (Figure 1.7c). En effet, plus la conductance h_c augmente et donc plus la résistance thermique d'interface diminue, plus la conductivité thermique relative augmente. Cependant à partir d'une conductance $h_c = 1.10^7 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ la conductivité thermique relative n'augmente plus et atteint donc une limite quelque soit la valeur de la conductance supérieure à $1.10^7 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$.

b) Cas de particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur

Dans ce modèle des cylindres de rayon a sont dispersés. Le développement de ce modèle définissant la conductivité thermique effective du composite tel qu'exprimé par l'équation(1.33) suit l'approche de Rayleigh. En effet, si nous considérons une interface parfaite c'est-à-dire que la résistance thermique d'interface $R_c \rightarrow 0$ donc que la conductance $h_c \rightarrow \infty$ nous retrouvons l'équation de Rayleigh spécifiée par l'équation(1.34).

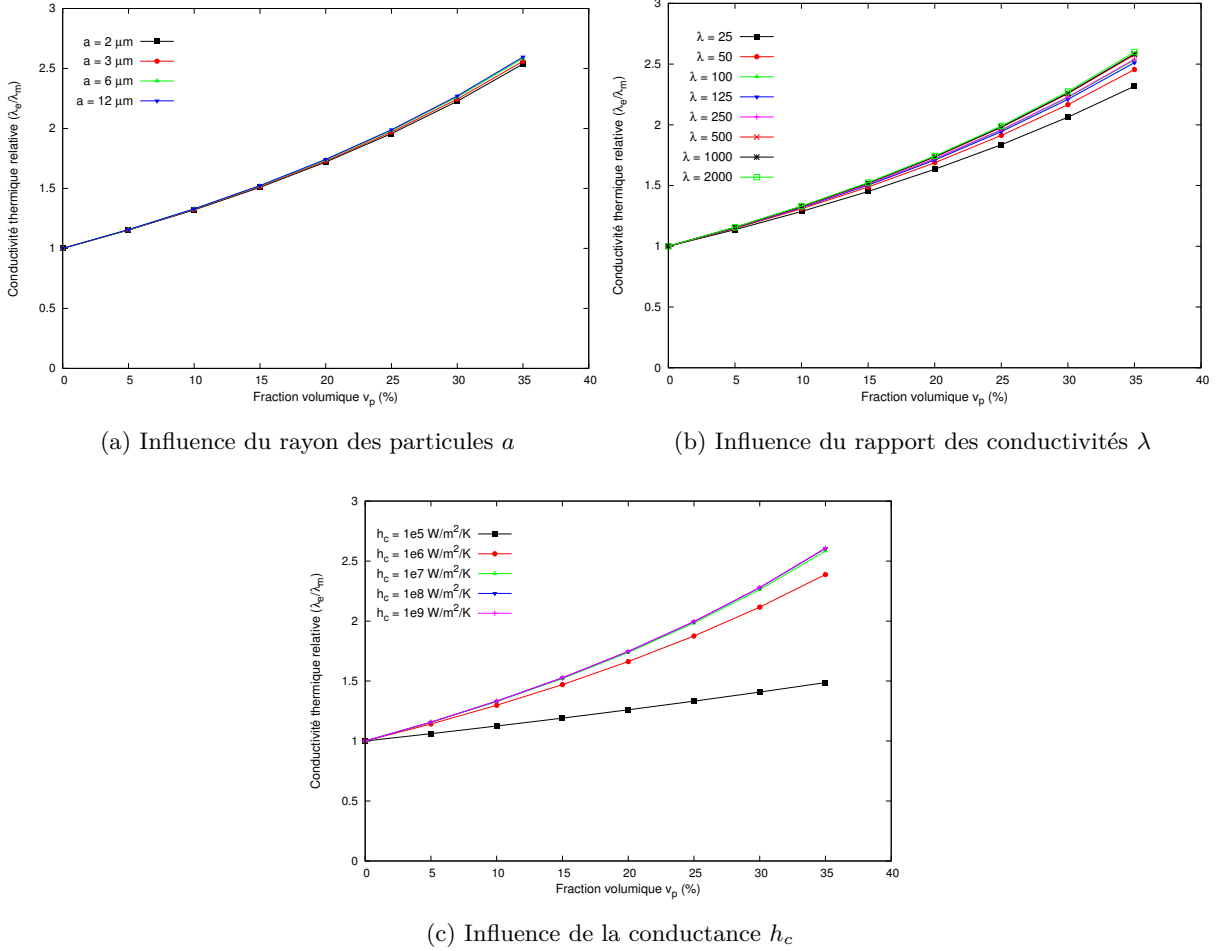


FIGURE 1.7 – Influence de différents paramètres sur la conductivité thermique dans le cas de particules sphériques pour le modèle de Hasselman et Johnson [18]

$$\lambda_e = \lambda_m \frac{\left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_p}{ah_c} \right) v_p + 1 + \frac{\lambda_p}{ah_c} + \lambda}{\left(1 + \frac{\lambda_p}{ah_c} - \lambda \right) v_p + 1 + \frac{\lambda_p}{ah_c} + \lambda} \quad (1.33)$$

$$\lambda_e = \lambda_m \frac{(\lambda - 1) v_p + 1 + \lambda}{(1 - \lambda) v_p + 1 + \lambda} \quad (1.34)$$

c) Cas de particules de type flocons orientées perpendiculairement au flux de chaleur

Dans ce modèle des particules de type flocons d'épaisseur a sont dispersées. Le développement de ce modèle défini par l'équation(1.35) suit l'approche de l'analogie électrique. En effet, si nous considérons une interface parfaite c'est-à-dire que la résistance thermique d'interface $R_c \rightarrow 0$ donc que la conductance $h_c \rightarrow \infty$ nous retrouvons l'équation définissant la borne inférieure de Wiener définie par l'équation(1.4).

$$\lambda_e = \frac{\lambda_p}{\left(1 - \lambda + \frac{2\lambda_p}{ah_c}\right)v_p + \lambda} \quad (1.35)$$

Comme explicité précédemment, généralement le mélange de particules dans une matrice entraîne une distribution aléatoire des particules dans la matrice. Des modèles prenant en compte des orientations de particules sont donc plus difficiles à utiliser pour déterminer la conductivité thermique effective d'un composite. La principale problématique avec les modèles considérant une résistance d'interface entre les particules et la matrice est que la valeur de cette résistance varie en fonction du type de particules et de matrice en présence. Sa détermination n'est jamais clairement définie dans les publications.

D'autres modèles ont été développés en considérant des particules enrobées d'une couche ayant une conductivité thermique différente de celles des particules et de la matrice. Notamment avec les travaux de Hatta et Taya [23], Benveniste et Miloh [24], Dunn et Taya [25] qui ont adapté le modèle auto-cohérent au cas de particules enrobées. Mais ces modèles sont essentiellement une démonstration mathématique de la faisabilité de pouvoir remplacer une particule enrobée par une inclusion homogénéisée équivalente. La validation expérimentale de ces modèles ne peut se faire que par méthode inverse, à mon sens, définissant ainsi des variables permettant d'approcher au mieux aux résultats expérimentaux sans forcément avoir de réalité physique.

La principale difficulté dans les modèles considérant une résistance thermique d'interface est d'en déterminer la valeur. En 1977, Matsumoto et al. [26] ont déterminé expérimentalement par mesure directe la résistance thermique à l'interface de sandwichs cuivre-époxy-cuivre pour des températures inférieures à 10 K. Ces résultats ont été mis en corrélation avec le modèle de dispersion acoustique développé par Little [20], qui définit la résistance thermique d'interface à l'aide de la réflexion et de la réfraction des phonons à l'interface. En 1974, Garrett et al. [27] ont mesuré le coefficient de conductivité thermique de résine chargée de particules de quartz, diamants, alumine et verre entre 2 et 300 K. Ils ont constaté que pour une température inférieure à 10 K le coefficient de conductivité thermique mesuré était inférieur à la valeur estimée. Ils ont supposé que cela était dû à la résistance thermique d'interface. Nous pouvons ainsi constater que dans ce cas-ci la détermination de la résistance thermique d'interface est indirecte. Enfin Alzina dans sa thèse [10] a développé des modèles permettant de définir le coefficient de conductivité thermique de matériaux composites renforcés de fibres de carbone en se basant sur les modèles de dispersion acoustique et de dispersion par diffusion [28] pour des températures cryogéniques. Cependant même si ces modèles présentent des avancées dans la détermination de la résistance thermique d'interface leur application reste complexe dans le cas de matrice dopée. De plus, les conditions aux limites en température dans notre étude sont supérieures à celles trouvées dans la littérature, les transferts thermiques n'ont pas le même comportement.

D'autres travaux ont été effectués sur des composites à base de nanotubes de carbone [29–33]. Plusieurs auteurs [34–37] ont ainsi observé que la résistance thermique d'interface variait en fonction du type de matrice, du type d'inclusions, de la géométrie de l'interface et de la température, de $1.52 \cdot 10^{-4}$ à $2.4 \cdot 10^{-9} K \cdot m^2 \cdot W^{-1}$. Dans la littérature, la détermination de cette

résistance dans le cas de matrice chargée est généralement indirecte. En effet, Huxtable et al. [35] et Cahill et al. [36] présentent une mesure de la conductance thermique d'interface (soit l'inverse de la résistance thermique d'interface) par absorption transitoire picoseconde. Ils ont ainsi déterminé que dans le cas de nanoparticules cette résistance thermique d'interface (appelée aussi résistance de Kapitza) varie entre $0.8 \cdot 10^{-8}$ et $20 \cdot 10^{-8} K \cdot m^2 \cdot W^{-1}$. Cette mesure étant faite sur des nanotubes en suspension dans un fluide il est difficile de pouvoir transposer la technique sur des microparticules de nature différente noyées dans une matrice solide.

Ces études mettent en relief la difficulté d'obtenir une valeur de résistance thermique précise et fiable, puisqu'il apparaît qu'elle dépend énormément du couple inclusions/matrice.

1.2 Modélisation numérique de la matrice chargée

Nous allons ici, aborder la modélisation numérique de la matrice chargée. Comme nous l'avons indiqué précédemment, nous souhaitons pouvoir disperser aléatoirement les particules dans la matrice. Pour cela deux méthodes sont mises en évidences dans la littérature : la méthode RSA (Random Sequential Adsorption) et la dynamique moléculaire.

1.2.1 Distribution aléatoire de particules basée sur la méthode RSA

La méthode RSA définit un algorithme basique qui positionne aléatoirement dans un cube élémentaire les centres des particules les uns après les autres en respectant des conditions aux limites périodiques. Ainsi cet algorithme tire la position aléatoire de la première particule puis celle de la seconde particule en vérifiant s'il y a collision. Deux types de collision sont possibles :

- une collision entre les deux particules ;
- une collision entre une particule et une des faces du cube élémentaire.

S'il y a collision entre les deux particules la seconde particule est supprimée et sa position est tirée aléatoirement à nouveau. S'il y a collision avec une des faces du cube élémentaire, la partie de la particule qui sort par une des faces rentre à nouveau dans le cube par la face opposée.

Cette séquence est répétée jusqu'à obtenir la fraction volumique souhaitée.

Un des principaux inconvénients de cet algorithme est qu'il ne permet pas de distribuer un grand nombre de particules dans le cube élémentaire, nous ne pouvons donc pas atteindre des fractions volumiques très élevées. Dans la littérature, les auteurs [38–40] s'accordent à dire que la fraction volumique maximale atteignable par cet algorithme est de l'ordre de 30%.

Certains auteurs ont donc modifié cet algorithme afin d'obtenir des fractions volumiques plus élevées de l'ordre de 50 à 60%.

Ainsi, Segurado et Llorca [39] en 2002 ont modifié l'approche RSA afin d'atteindre une fraction volumique de l'ordre de 50% pour des particules sphériques. Pour cela ils ont défini un nouvel algorithme qui distribue aléatoirement 30 particules sphériques de même dimension

dans un cube élémentaire défini de telle façon que la fraction volumique de particules soit inférieure à la fraction volumique à atteindre. Ce cube élémentaire est ensuite compressé en plusieurs étapes et la fraction volumique mise à jour à chaque pas. Cependant chaque étape de compression peut entraîner une superposition des particules entre elles. Si deux particules se touchent l'une des deux particules est déplacée suivant un vecteur défini aléatoirement. S'il y a toujours interférence avec une autre particule, la particule déplacée revient à sa position d'origine et elle est à nouveau déplacée suivant un autre vecteur aléatoire. Ce processus est répété jusqu'à ce qu'il n'y ait plus d'interférence entre les particules. Toute la démarche continue jusqu'à atteindre la fraction volumique recherchée. Cette modification permet une distribution aléatoire plus dense que l'algorithme de base.

Une autre façon d'obtenir une fraction volumique plus élevée est de se rapprocher de la réalité matériau. En effet, les deux algorithmes présentés précédemment considèrent que toutes les particules ont la même dimension. Or généralement les particules n'ont pas une taille identique. Ainsi Kari et al. [41] en 2007 ont présenté un algorithme basé sur la méthode RSA en considérant différentes tailles de particules et en les répartissant dans le cube élémentaire de manière décroissante. Cet algorithme permet ainsi d'atteindre une fraction volumique de particules de l'ordre de 60% pour des particules sphériques.

Étant donné que nous considérons une répartition aléatoire de nos particules dans la matrice, il n'y a pas de notions de périodicité dans notre volume élémentaire représentatif. La méthode RSA devra donc être adaptée.

1.2.2 Distribution aléatoire de particules basée sur la dynamique moléculaire

Une autre manière de distribuer aléatoirement des particules dans un cube élémentaire est de se baser sur la dynamique moléculaire. En 1990, Lubachevsky et Stillinger [42] ont développé un nouvel algorithme basé sur la dynamique moléculaire permettant dans un premier temps de disperser des disques dans une cellule élémentaire 2D. En 1991, les auteurs [43] ont étendu l'algorithme au cas de sphères dispersées aléatoirement dans un cube élémentaire 3D.

Cet algorithme part du principe qu'au temps zéro toutes les inclusions sont créées et ont un volume nul. Une position et un vecteur vitesse leurs sont attribués aléatoirement. Les particules sont ensuite mises en mouvement et leur volume augmente à chaque itération jusqu'à atteindre la fraction volumique souhaitée. A chaque itération deux types d'événements sont vérifiés :

- les collisions binaires ;
- les collisions entre les particules et les faces de la cellule élémentaire.

Dans le cas de collisions binaires, c'est-à-dire de collisions entre particules, leur vecteur vitesse est mis à jour selon le principe de l'énergie cinétique. Par contre, dans le cas où une particule quitte la cellule à travers une face, elle doit rentrer par la face opposée afin d'assurer les conditions aux limites de périodicité.

Ce type d'algorithme permet d'obtenir des fractions volumiques plus importantes de l'ordre de 60 à 74% (remplissage théorique maximum pour des particules sphériques).

Les travaux de Lubachevsky et Stillinger ont été étendus au cas de particules non sphériques par Donev et al. [44, 45]. Donev et al. ont ainsi défini le concept de "proche voisin" permettant de limiter la vérification des collisions entre particules. En effet, les auteurs ont défini une limite de voisinage pour chaque particule. La collision entre deux particules est vérifiée si leur limite de voisinage se superposent. Les auteurs ont constaté cependant que cet algorithme est plus efficace pour des systèmes de particules ayant un facteur de forme faible et avec des variations de taille des particules faibles.

Le développement de cet algorithme est plus complexe que la méthode RSA. L'objectif final de ce projet étant de développer un matériau hybride constitué d'une matrice chargée de particules dopantes et renforcée par des fibres longues de carbone, la fraction volumique de particules n'excédera pas 20%. La méthode RSA devrait donc être suffisante pour développer notre modèle numérique.

1.3 Modélisation des renforts fibres longues

Nous venons de passer en revue les différents modèles analytiques relatifs aux composites à renforts particuliers, ce qui correspond à la première étape du projet THEOREM : dopage de la matrice. Cette matrice devant être renforcée par des fibres de carbone, nous allons à présent passer en revue les différents modèles analytiques permettant de déterminer la conductivité thermique de composites à renforts fibreux. Ces renforts fibreux, nous le verrons, peuvent être soit des fibres longues unidirectionnelles soit des textiles 2D ou 3D ou encore de type Interlock 2.5 D.

Les modèles présentés précédemment s'appliquent dans le cas de dispersions aléatoires de particules dans une matrice. Du fait de la distribution aléatoire des particules la conductivité thermique effective du composite peut être considérée comme isotrope.

Contrairement aux composites à renforts particuliers, dans le cas de matériaux composites renforcés par des fibres longues de carbone, la conductivité thermique effective du composite est anisotrope. En effet, Rolfes et al. [46] ont constaté que les conductivités thermiques longitudinale (λ_{fl}) et transverse (λ_{ft}) d'une fibre de carbone sont différentes. D'après Rolfes et al., dans le cas d'une fibre de carbone PITCH le rapport des conductivités thermiques $\lambda_{ft}/\lambda_{fl}$ est de l'ordre de 150, alors que dans le cas de fibres de carbone PAN il est de 3.5.

Tous les modèles de prédiction de conductivité thermique des composites sont basés sur des théories qui prennent toutes en compte, au minimum, les fractions volumiques et les conductivités thermiques des fibres et de la matrice. Certains modèles veulent prendre en compte d'autres paramètres intrinsèques au matériau composite tels que le taux de porosité ou encore la résistance thermique d'interface entre les fibres et la matrice. La difficulté dans l'ajout de ces paramètres est qu'il est extrêmement complexe d'appréhender totalement la distribution géométrique des porosités dans un stratifié composite. Il en est de même, pour la valeur de la résistance thermique d'interface dont la détermination est loin d'être triviale.

Dans cette partie de l'état de l'art, nous avons classé les modèles analytiques en fonction du type de renforts utilisé : unidirectionnel ou textiles 2D. Nous n'avons pas trouvé dans la

littérature de modèles analytiques permettant de définir le coefficient de conductivité thermique de renforts de type 2.5D ou 3D.

1.3.1 Unidirectionnels

Dans le cas d'un composite unidirectionnel les hypothèses les plus souvent rencontrées dans la littérature sont :

- la section des fibres est circulaire [34, 46]
- toutes les fibres sont identiques et distribuées de façon homogène dans la matrice [4, 34, 46–48]
- le profil de température est indépendant de la direction parallèle aux fibres, c'est-à-dire que nous faisons l'hypothèse de l'absence de gradient de température dans cette direction. Nous pouvons ainsi réduire le problème à un problème 2D [4]
- les fibres et la matrice sont homogènes et isotropes dans le plan considéré [4, 47, 48]
- le composite est considéré isotrope transverse, ainsi il est possible de mettre en évidence deux conductivités thermiques effectives distinctes : la conductivité thermique longitudinale effective $\lambda_x = \lambda_l$ et la conductivité thermique transverse effective $\lambda_y = \lambda_z = \lambda_t$ (Figure 1.8) [4, 48]

1.3.1.1 Conductivité thermique longitudinale effective

La conduction de chaleur se fait parallèlement à l'axe des fibres, selon \vec{x} d'après la Figure 1.8. Ainsi la conductivité thermique longitudinale effective, λ_{le} , n'est pas influencée par les caractéristiques de l'interface fibres/matrice, elle peut donc facilement être définie par la loi des mélanges telle que définie dans la section 1.1.1.1 par l'équation(1.6). Nous la redéfinissons ici avec l'équation(1.36) en remplaçant les caractéristiques des particules par celles des fibres :

$$\lambda_{le} = \lambda_{fl}v_f + \lambda_m(1 - v_f) \quad (1.36)$$

avec λ_{le} , la conductivité thermique longitudinale effective du composite, λ_{fl} , la conductivité thermique longitudinale des fibres, λ_m , la conductivité thermique de la matrice et v_f , la fraction volumique de fibres.

Par contre, la détermination de la conductivité thermique transverse effective, λ_{te} , nécessite plus de réflexion.

1.3.1.2 Conductivité thermique transverse effective

Modèle des couches en série Le modèle le plus basique est celui basé sur l'analogie des résistances électriques. Il correspond au modèle des couches en série présenté à la section 1.1.1.1 (Figure 1.1a) dans le cas de particules dispersées dans une matrice. Si nous appliquons la même équation pour des fibres réparties dans une matrice nous obtenons l'équation(1.37).

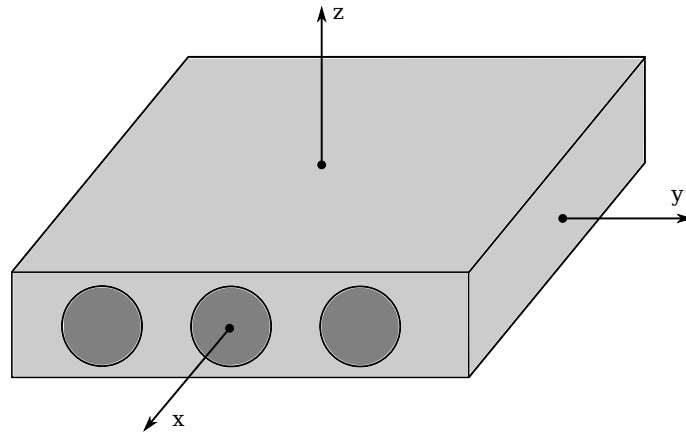


FIGURE 1.8 – Composite unidirectionnel

$$\lambda_{te} = \frac{1}{\frac{v_f}{\lambda_{ft}} + \frac{(1-v_f)}{\lambda_m}} \quad (1.37)$$

Cependant le principal inconvénient de ce modèle est qu'il ne prend absolument pas en compte la forme, la taille ou la répartition des fibres dans la matrice. De plus, il considère une interface fibres/matrice parfaite.

Modèle de Springer-Tsaï En 1967, Springer et Tsaï [4] présentent deux méthodes permettant de déterminer la conductivité thermique transverse effective d'un matériau unidirectionnel. La première méthode est basée sur l'analogie entre le chargement en cisaillement longitudinal et le transfert de chaleur transverse (Figure 1.9). Ils définissent ainsi la conductivité thermique transverse effective grâce à l'équation(1.38) :

$$\lambda_{te} = \frac{\bar{q}}{\frac{\Delta T}{2a}} \quad (1.38)$$

avec \bar{q} le flux de chaleur moyen, ΔT le gradient de température et $2a$ la longueur du volume élémentaire représentatif (V.E.R.).

La deuxième méthode consiste à remplacer l'ensemble fibre/matrice par un modèle thermique idéal. Les deux modèles considèrent une interface fibres/matrice parfaite. Les auteurs se sont basés sur le modèle des couches en série pour développer un nouveau modèle prenant en compte la forme et la répartition des fibres dans la matrice. Ils ont ainsi défini un V.E.R. bi-dimensionnel de section rectangulaire englobant une fibre de section elliptique (Figure 1.10).

Pour ce modèle, il est considéré que le delta de température, ΔT , reste constant entre $x = \pm a$ et que le flux de chaleur Q , qui traverse la surface en $x = -a$, peut être divisé en trois

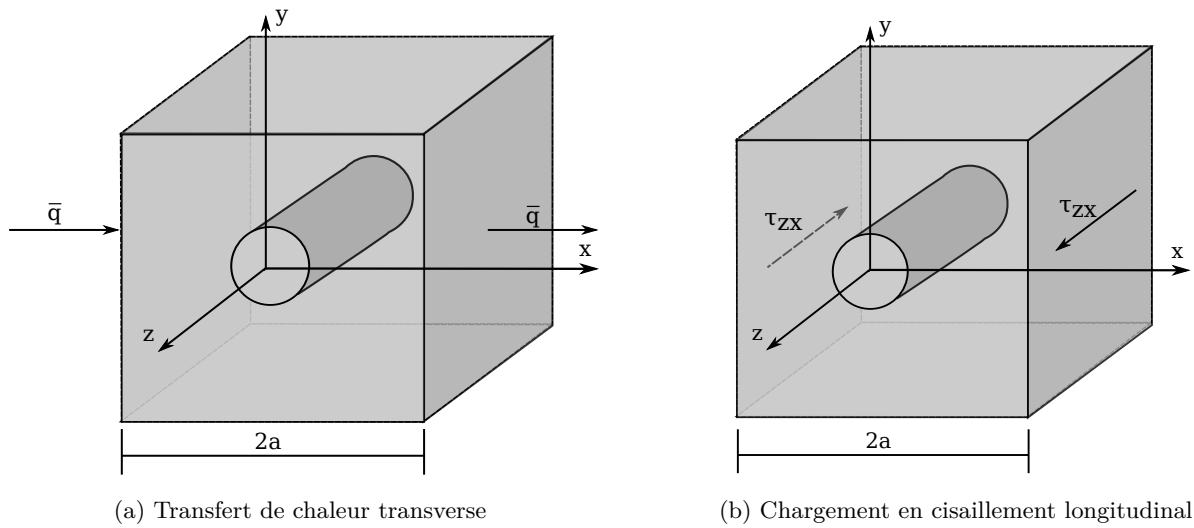


FIGURE 1.9 – Eléments utilisés pour l'analogie entre le transfert de chaleur transverse et le chargement en cisaillement longitudinal [4]

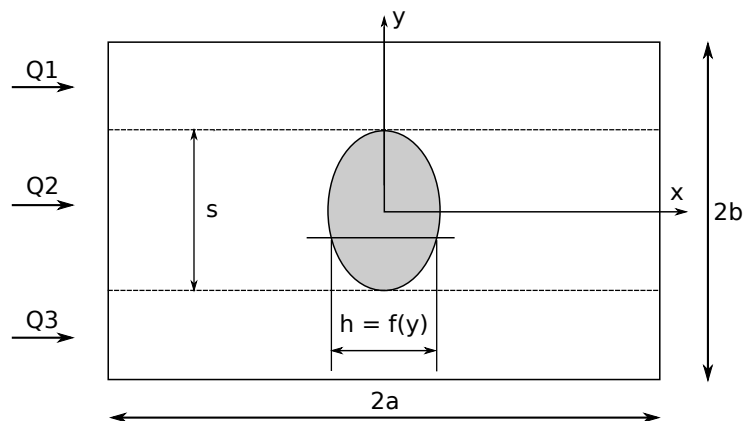


FIGURE 1.10 – Volume élémentaire représentatif bi-dimensionnel de Springer et Tsai [4]

parties indépendantes. Ainsi le flux thermique par unité de longueur peut s'exprimer par : $Q = Q_1 + Q_2 + Q_3$. Seul le flux Q_2 traverse la matrice et la fibre en série.

Pour une section de fibre elliptique avec un arrangement rectangulaire, la conductivité thermique transverse effective est donnée par l'équation(1.39).

$$\lambda_{te} = \lambda_m \left[\left(1 - \frac{s}{2b}\right) + \frac{a}{b} \int_0^s \frac{1}{(2a - h) + h \frac{\lambda_m}{\lambda_{ft}}} \right] \quad (1.39)$$

avec s la dimension maximale de la fibre dans la direction \vec{y} et h la largeur de la fibre qui est fonction de \vec{y} .

L'équation(1.39) devient pour une section de fibre cylindrique avec un arrangement carré :

$$\lambda_{te} = \lambda_m \left[\left(1 - 2\sqrt{\frac{v_f}{\pi}} \right) + \frac{1}{B} \left(\pi - \frac{4}{\sqrt{1 - \frac{B^2 v_f}{\pi}}} \tan^{-1} \frac{\sqrt{1 - \frac{B^2 v_f}{\pi}}}{1 + \sqrt{\frac{B^2 v_f}{\pi}}} \right) \right] \quad (1.40)$$

avec $B = 2 \left(\frac{\lambda_m}{\lambda_{ft}} - 1 \right)$

Springer et Tsai ont montré que le modèle thermique idéal donne une valeur inférieure à celle du modèle par analogie avec le chargement en cisaillement pour des fractions volumiques d'environ 75% de fibres.

Ces modèles restent cependant assez basiques car ils ne prennent pas en compte les interactions entre les fibres ni les résistances thermiques d'interface qu'il peut y avoir entre les fibres et la matrice. De plus, la direction du flux de chaleur est considérée uniforme ce qui signifie qu'elle n'est pas influencée par la fibre, ce qui ne correspond pas à la réalité.

Modèle auto-cohérent Ce modèle, défini par Hermans [46], est basé sur l'analogie avec l'étude des modules de cisaillement longitudinal et transverse développé par Hill. Le matériau composite est modélisé comme une fibre seule entourée d'un cylindre de matrice, l'ensemble étant englobé par un milieu homogène infini qui est macroscopiquement identique au composite (Figure 1.11).

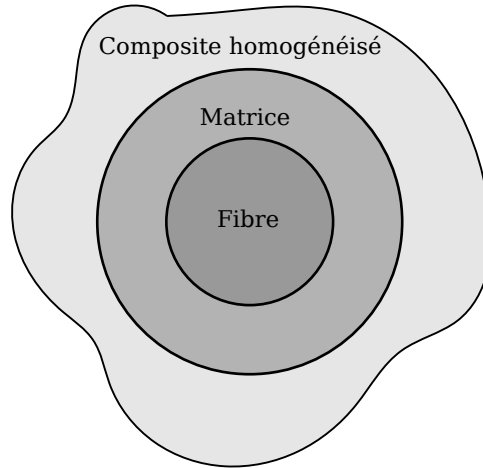


FIGURE 1.11 – Modèle auto-cohérent

Ce modèle définit la conductivité thermique transverse effective par l'équation(1.41), et est défini en terme de module réduit de Hill.

$$\lambda_{te} = \lambda_m \frac{\lambda_{ft} + \lambda_m + (\lambda_{ft} - \lambda_m) v_f}{\lambda_{ft} + \lambda_m - (\lambda_{ft} - \lambda_m) v_f} \quad (1.41)$$

avec λ_{te} la conductivité thermique effective du composite, λ_m la conductivité thermique de la matrice, λ_{ft} la conductivité thermique transverse de la fibre et v_f la fraction volumique de fibres.

La couche de matrice entre la fibre et le composite homogénéisé permet de prendre en compte une interface fibres/matrice imparfaite, autrement dit une résistance thermique d'interface. Ce modèle se rapproche plus de la réalité de la fabrication. En effet, l'imprégnation d'un tissu implique l'enrobage des fibres par la matrice.

Modèle de Halpin-Tsaï Le développement du modèle de Halpin-Tsaï est basé sur la méthode auto-cohérente développée par Hill dans le cas de la micromécanique. Halpin et Tsaï [49] ont réduit les résultats de Hermans [46] à une forme analytique plus simple et ont étendu son utilisation à différents types de renforts. Les auteurs déterminent la conductivité thermique transverse effective, λ_{te} , par l'équation(1.42) :

$$\frac{\lambda_{te}}{\lambda_m} = \frac{1 + \xi\eta v_f}{1 - \eta v_f} \quad (1.42)$$

$$\text{avec } \eta = \frac{\frac{\lambda_{ft}}{\lambda_m} - 1}{\frac{\lambda_{ft}}{\lambda_m} + \xi} \quad \text{et} \quad \log \xi = \log \left(\frac{a}{b} \right) \sqrt{3}$$

Le paramètre ξ dépend des dimensions a et b des 2 axes de la section de la fibre (Figure 1.12).

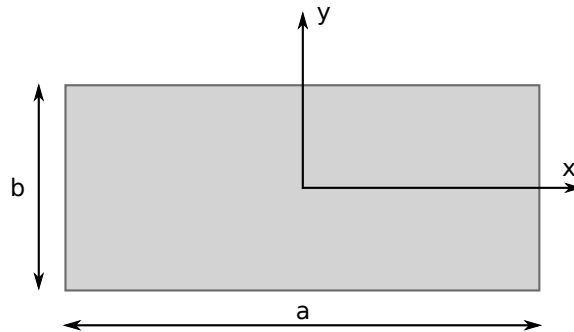


FIGURE 1.12 – Définition des paramètres a et b

Dans le cas de fibre de section circulaire $\xi = 1$, l'équation(1.42) revient à exprimer l'équation(1.41) définissant le modèle auto-cohérent.

Les deux modèles précédemment présentés (modèles auto-cohérent et de Halpin-Tsaï) dépendent de la conductivité thermique transverse des fibres. La valeur de cette conductivité est difficile à obtenir. En effet, mesurer la conductivité thermique transverse sur une fibre dont le diamètre est de l'ordre de $7 \mu m$ n'est pas chose triviale. Généralement, la détermination de cette conductivité thermique se fait par méthode inverse, c'est-à-dire que nous mesurons les propriétés de la matrice puis du composite afin d'en déduire les propriétés de la fibre [50]. Cette méthode

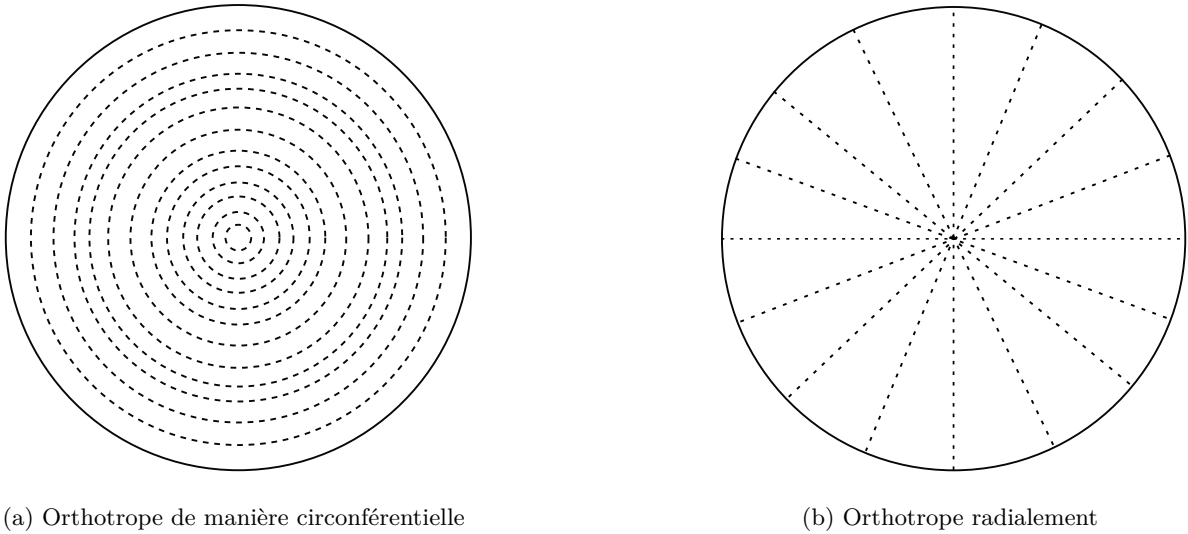


FIGURE 1.13 – Fibres orthotropes

n'est valable que si les conductivités thermiques des fibres et de la matrice sont proches et que les fibres et la matrice ont un contact parfait entre elles. Si la conductivité thermique de la fibre est très supérieure à celle de la matrice les résultats sont sensibles au modèle utilisé ainsi qu'aux mesures de la conductivité thermique de la matrice et de la fraction volumique de fibres. De plus, nous considérons ici que la conductivité thermique des fibres est isotrope transverse. Or Rolfes et al. [46] ainsi que Grujicic et al. [51] ont montré qu'en fonction du type de fibres de carbone notamment (PAN ou PITCH), la conductivité thermique transverse des fibres évolue de manière différente. Dans le cas de fibre de type PAN la conductivité thermique transverse est orthotrope de manière circonférentielle tandis que dans le cas de fibres de type PITCH la conductivité thermique transverse est orthotrope radialement (Figures 1.13a et 1.13b).

Ces modèles sont donc difficiles à exploiter de par la difficulté d'obtenir les valeurs caractéristiques nécessaires à la résolution de ces équations(1.41) et (1.42).

Modèle de Lewis-Nielsen Le modèle développé par Lewis et Nielsen [2,3] et présenté dans la section 1.1.1.3 peut également être appliqué dans le cas de composites renforcés par des fibres longues.

Nous rappelons les équations déjà développées dans la section 1.1.1.3 :

$$\lambda_c = \lambda_m \left(\frac{1 + ABv_f}{1 - Bv_f\psi} \right) \quad (1.43)$$

$$\text{avec } B = \frac{\lambda_{ft} - 1}{\lambda_m} \quad \text{et} \quad \psi = 1 + \left(\frac{1 - \phi_m}{\phi_m^2} \right) \frac{\lambda_{ft}}{\lambda_m} + A$$

Dans ce cas là, les valeurs des paramètres ϕ_m et A sont définies dans les tableaux 1.3 et 1.4.

Distribution	ϕ_m
Hexagonal	0.907
Cubique	0.785

TABLEAU 1.3 – Fraction volumique maximum de fibres (ϕ_m) en fonction de la distribution des fibres dans la mèche

Types de renforts	Direction du flux de chaleur	A
Fibres orientées uniaxialement	Parallèle aux fibres	$2L/D^*$
* L : Longueur des fibres, D : diamètre des fibres		
Fibres orientées uniaxialement	Perpendiculaire aux fibres	0.5

TABLEAU 1.4 – Valeurs du paramètre A en fonction de la direction du flux de chaleur par rapport aux fibres

Ce modèle est plus représentatif de la réalité matériau que les modèles précédents car il prend en compte le fait qu'il n'y a pas 100% de fibres dans une mèche. En effet, quand la fraction volumique de fibres tend vers ϕ_m , la conductivité thermique du renfort tend vers la conductivité thermique de fibres.

Modèle de Hasselman et Johnson En 1993, Hasselman et Johnson [34] développent un modèle permettant de définir la conductivité thermique transverse effective d'un composite unidirectionnel en prenant en compte une résistance thermique d'interface entre les fibres et la matrice. Le modèle est défini par l'équation(1.44), dans le cas d'une fibre cylindrique orthotrope de rayon a et de conductivités thermiques radiale et tangentielle, λ_r et λ_θ , située dans une matrice infinie de conductivité thermique, λ_m , et soumise à un flux de chaleur avec un gradient de température ∇T à $z \gg a$.

$$\lambda_{te} = \lambda_m \frac{\left(\frac{(\lambda_\theta \lambda_r)^{1/2}}{\lambda_m} - \frac{(\lambda_\theta \lambda_r)^{1/2}}{ah_c} - 1 \right) v_f + \left(1 + \frac{(\lambda_\theta \lambda_r)^{1/2}}{\lambda_m} + \frac{(\lambda_\theta \lambda_r)^{1/2}}{ah_c} \right)}{\left(1 - \frac{(\lambda_\theta \lambda_r)^{1/2}}{\lambda_m} + \frac{(\lambda_\theta \lambda_r)^{1/2}}{ah_c} \right) v_f + \left(1 + \frac{(\lambda_\theta \lambda_r)^{1/2}}{\lambda_m} + \frac{(\lambda_\theta \lambda_r)^{1/2}}{ah_c} \right)} \quad (1.44)$$

Les auteurs ont défini la section de la fibre dans un système de coordonnées polaires telle que présentée sur la Figure 1.14.

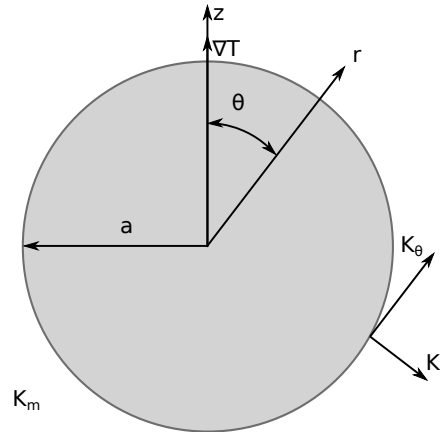


FIGURE 1.14 – Système de coordonnées polaires pour une fibre cylindrique orthotrope

Comme dans le modèle présenté dans le cas d'un composite particulière section 1.1.2.2, ce modèle prend en compte une résistance thermique d'interface entre les fibres et la matrice en faisant intervenir une conductance, h_c .

Ce modèle a été développé dans le cas de fractions volumiques faibles c'est-à-dire qu'il n'y a aucune interaction entre les fibres. Cette hypothèse ne convient pas à notre étude car nous nous situons à des fractions volumiques de fibres de l'ordre de 50%. De plus, ce modèle prend en compte les conductivités thermiques radiale et tangentielle, λ_θ et λ_r , sans pour autant expliciter les méthodes de détermination de ces conductivités.

L'utilisation de renforts unidirectionnels est une première approche dans l'amélioration de la conductivité thermique d'un composite. Cependant un renfort unidirectionnel n'améliore pas significativement la conductivité thermique que dans le sens longitudinal des fibres. Afin d'améliorer la conductivité thermique dans plusieurs directions nous allons maintenant nous pencher sur des modèles s'appuyant sur des renforts de type textiles 2D.

1.3.2 Renforts de type textiles 2D

Les modèles analytiques de renforts textiles 2D existants dans la littérature sont pour la plupart basés sur des renforts simples de type taffetas ou satin. Généralement, ils définissent un V.E.R. représentant le plus petit volume périodique répétable dans le stratifié (Figure 1.15). Les dimensions de ce V.E.R. dans le plan sont fonction de l'écartement des mèches dans les sens chaîne et trame. Quant aux dimensions hors plan elles sont fonction de l'épaisseur d'un pli sachant que l'épaisseur du stratifié est considéré comme un empilement du même pli.

Les conditions aux limites pour la conduction de chaleur peuvent être définies de deux façons :

- soit avec une différence de température entre deux faces opposées et les autres faces adiabatiques (Figure 1.16a).
- soit avec un flux de chaleur entre deux faces opposées et les autres faces adiabatiques (Figure 1.16b).

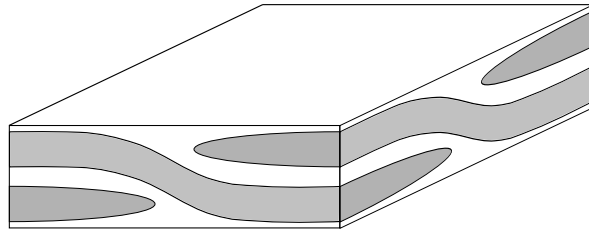


FIGURE 1.15 – Exemple de V.E.R. pour un taffetas

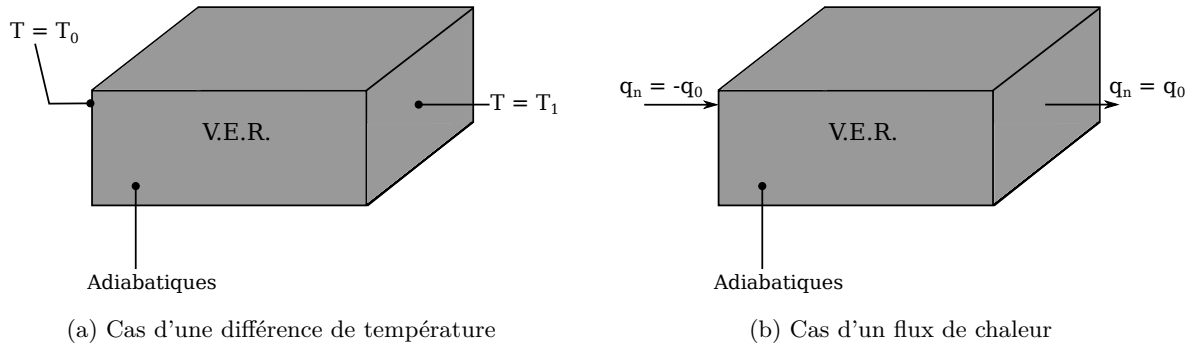


FIGURE 1.16 – Conditions aux limites

Dans la littérature, les deux modèles analytiques qui traitent des renforts 2D sont le modèle de Dasgupta [52] et le modèle de Ning et Chou [47, 48].

1.3.2.1 Modèle de Dasgupta

En 1992, Dasgupta et Agarwal [52] développent un modèle d'homogénéisation pour prédire la conductivité thermique orthotrope d'un stratifié à renforts textiles de type taffetas. Pour définir le modèle géométrique du taffetas (Figure 1.17) ces auteurs ont considéré que :

- les différences entre les fibres sens chaîne et sens trame sont négligées
- les dimensions du renfort dans le sens chaîne et le sens trame sont identiques (c'est-à-dire qu'il y a le même nombre de fibres dans les mèches sens trame et sens chaîne, le renfort est dit équilibré)

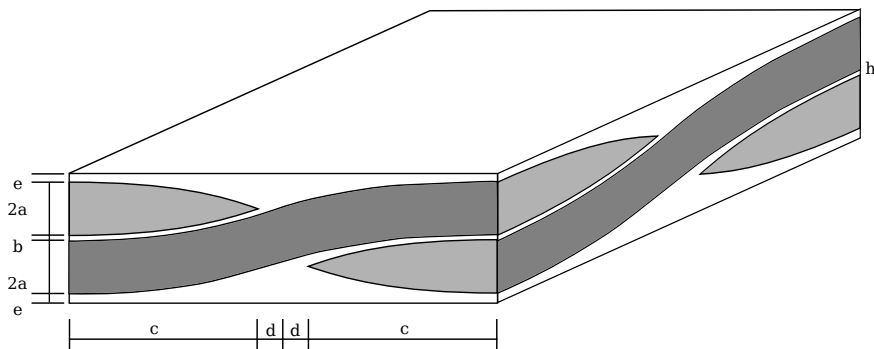


FIGURE 1.17 – V.E.R. d'un taffetas défini par Dasgupta et al. [52]

Deux modèles ont été définis afin de déterminer les conductivités thermiques dans le plan et hors plan. Dans les deux cas le V.E.R. a été réduit à son quart en exploitant les symétries (ou antisymétries) de l'architecture du renfort (Figure 1.18a).

La conductivité thermique effective du stratifié est définie par l'équation(1.45).

$$\lambda_i = \frac{l_i}{A_i R_i} \quad (i = x, y, z) \quad (1.45)$$

où l est la dimension du V.E.R. parallèle au flux de chaleur, A est l'aire du 1/4 de la coupe transverse perpendiculaire au flux de chaleur, et R est la résistance thermique effective le long de l'axe parallèle au flux de chaleur.

Les résistances thermiques effectives sont obtenues numériquement en intégrant les résistances thermiques d'un élément différentiel du V.E.R. Deux modèles ont été définis : un dans le plan et un hors plan.

a) Modèle dans le plan

La résistance thermique effective dans le plan R_x est définie par l'équation(1.46).

$$R_x = \int_0^{(c+d)} dR = \int_0^{(c+d)} R(x) dx \quad (1.46)$$

La résistance thermique de l'élément dx (Figure 1.18b) est obtenue en connectant les résistances thermiques effectives des sous domaines E_1 , E_2 , E_3 et E_4 (Figure 1.18a) en parallèle. Il est supposé que la température reste uniforme à travers chaque coupe transverse. Les résistances thermiques des sous domaines E_1 et E_2 sont groupées pour former la résistance thermique R_1 et les résistances des sous domaines E_3 et E_4 sont groupées pour former la résistance thermique R_2 .

La résistance thermique $R(x)$ s'exprime donc :

$$R(x) = \frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2} \quad (1.47)$$

Les résistances thermiques R_1 et R_2 sont exprimées par les équations(1.48) et (1.49), en fonction des paramètres géométriques de l'élément différentiel dx représentés par la figure 1.18b.

$$R_1 = \left[\int_0^{(c+d)} (g_{w1} z_{w1} k_{lx} + g_r z_{r1} k_r) dy \right]^{-1} \quad (1.48)$$

$$R_2 = \left[\int_0^{(c+d)} (g_{w2} z_{w2} k_{lx} + g_f z_f k_{tx} + g_r z_{r2} k_r) dy \right]^{-1} \quad (1.49)$$

où z_i est la hauteur des sous domaines E_i , k_j sont les coefficients de conductivité thermique définis par les équations(1.50) et (1.51) et w , f et r correspondent aux paramètres relatifs aux mèches sens chaîne, sens trame et à la résine. La température étant considérée uniforme les fonctions poids g_j sont égales à 1.

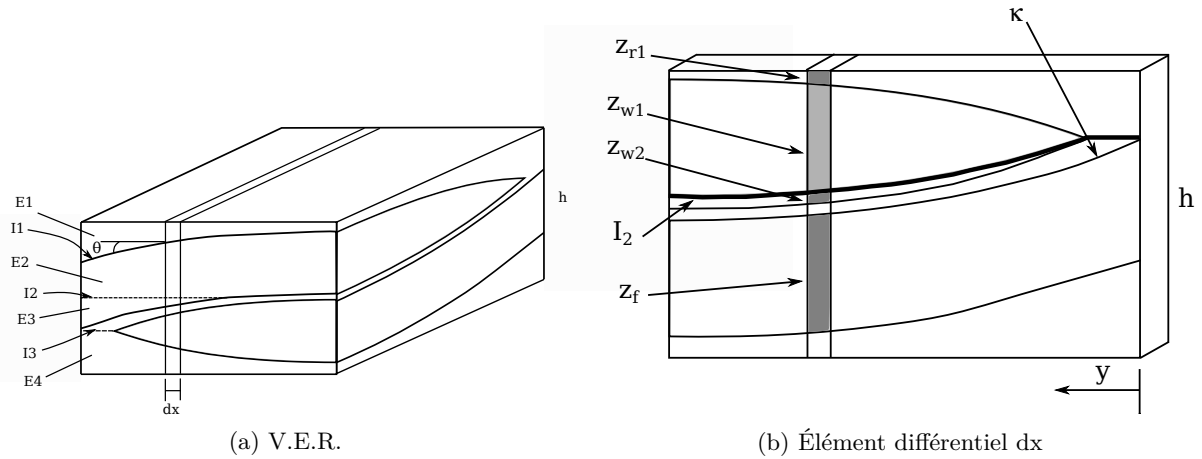


FIGURE 1.18 – V.E.R. dans le plan

$$k_{lx} = k_l \cos(\theta)^2 + k_t \sin(\theta)^2 \quad (1.50)$$

$$k_{tx} = k_l \sin(\theta)^2 + k_t \cos(\theta)^2 \quad (1.51)$$

Le paramètre z_{r2} , dépendant des autres paramètres, est défini par l'équation(1.52).

$$z_{r2} = h - (z_{w1} + z_{w2}) - z_f - z_{r1} \quad (1.52)$$

θ est la pente de la mèche par rapport à l'axe x et est définie par l'équation(1.53).

$$\theta(x) = \cos \left(\frac{\kappa - \alpha(x)}{\kappa} \right)^{-1} \quad (1.53)$$

$$\text{avec } \alpha(x) = \kappa - (\kappa^2 - x^2)^{0.5} \quad \text{et} \quad \kappa = \frac{(c+d)^2 + (A+0.5b)^2}{2(a+0.5b)}$$

avec κ la courbure de la mèche telle que représentée sur la Figure 1.18b.

b) Modèle hors plan

La figure 1.19b montre l'élément différentiel dy . Comme pour le modèle dans le plan la résistance thermique R_z est définie par l'équation(1.54).

$$R_z = \int_0^{(c+d)} \left[\int_0^{(c+d)} \frac{dx}{g \left(\frac{z_w}{k_{ty}} + \frac{z_f}{k_{ty}} + \frac{z_r}{k_r} \right)} \right] dy \quad (1.54)$$

Comme nous pouvons le constater ces modèles ne sont pas des plus triviaux. En effet, ce sont des modèles semi-empiriques car ils sont basés sur les dimensions du renfort. Cela nécessite donc d'avoir une phase de mesures par microscopie optique ou autre. Ce modèle n'est donc pas utilisable dans le cas où le matériau final n'est pas connu. De plus, le fait de considérer les mèches sens chaîne et sens trame identiques oblige à ne considérer que des renforts équilibrés.

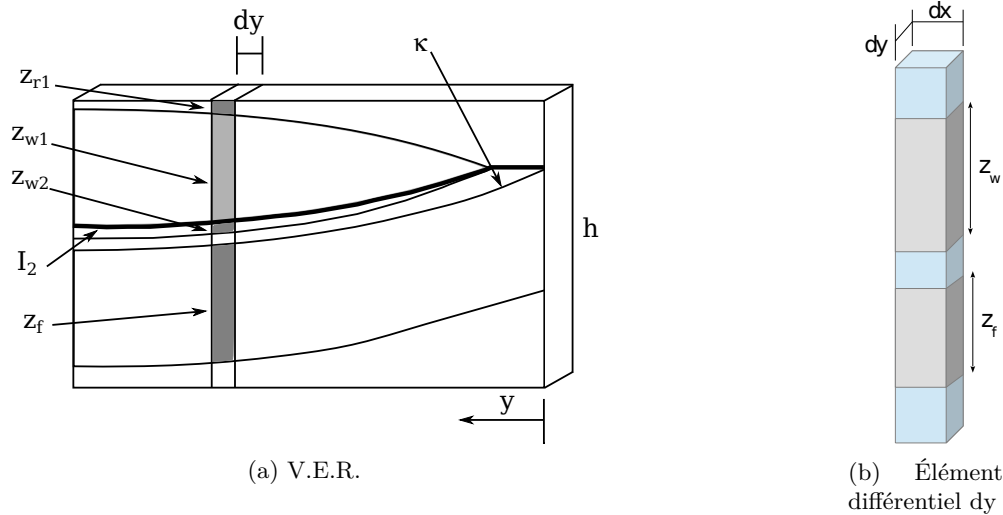


FIGURE 1.19 – V.E.R hors plan

1.3.2.2 Modèle de Ning et Chou

Ning et Chou [47, 48] ont développé deux modèles distincts pour prédire la conductivité thermique effective dans le plan et hors plan d'un stratifié. Le premier modèle, développé en 1995 [47], permettant de prédire la conductivité thermique dans le plan, a été défini dans le cas d'un stratifié de type taffetas. Le V.E.R. utilisé pour prédire la conductivité thermique dans le plan est présenté Figure 1.20. Les paramètres géométriques dans les sens chaîne et trame sont considérés différents. Le stratifié est constitué d'un seul pli.

La modélisation exacte du taffetas étant complexe les auteurs considèrent que les mèches imprégnées par la matrice peuvent être modélisées comme des fibres inclinées d'un angle moyen, θ , par rapport à l'axe de référence (axe parallèle aux fibres).

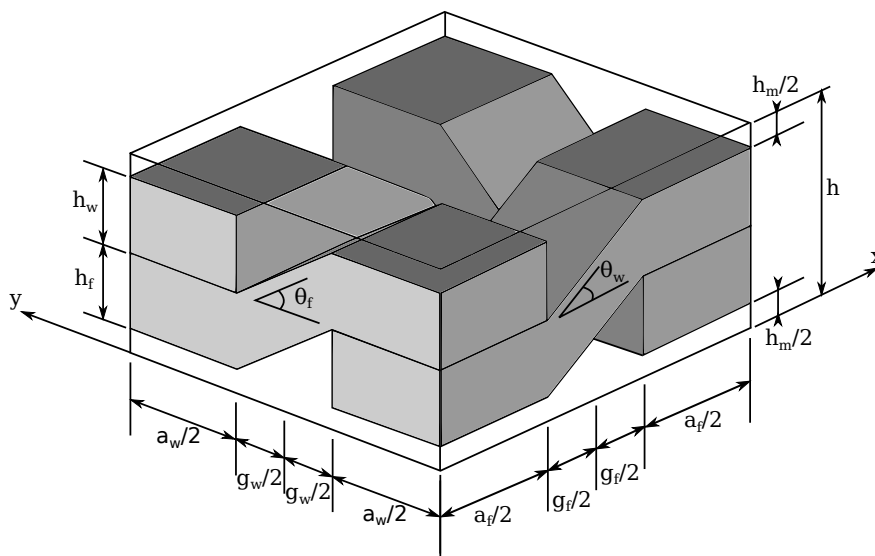


FIGURE 1.20 – V.E.R. défini par Ning et Chou [47]

Ning et Chou ont divisé ce V.E.R en 28 éléments et en utilisant l'analogie entre l'électricité et le thermique ont défini, comme sur la Figure 1.21, un réseau 3D de résistances thermiques équivalentes.

Les auteurs expriment, dans l'équation(1.55), la conductivité thermique effective dans le plan dans le sens chaîne, λ_{ec} , en fonction de la résistance thermique effective, R , définie par l'équation(1.56) et différents paramètres géométriques fonction du sens chaîne (w ou *warp* en anglais) ou du sens trame (f ou *fill* en anglais) :

$$\lambda_{ec} = \frac{2(a_f + g_f)}{R(a_w + g_w)h} \quad (1.55)$$

$$R = \left[\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_4} + \frac{1}{R_{25}} + \frac{1}{R_{26}} + \frac{1}{R_2 + R_3} + \frac{1}{R_5 + \frac{1}{\frac{1}{R_6} + \frac{1}{R_7 + R_8}}} + \frac{1}{R_9 + \frac{1}{\frac{1}{R_{10}} + \frac{1}{R_{11} + R_{12}}}} \right]^{-1} + \left[\frac{1}{R_{13}} + \frac{1}{R_{16}} + \frac{1}{R_{27}} + \frac{1}{R_{28}} + \frac{1}{R_{14} + R_{15}} + \frac{1}{\frac{1}{\frac{1}{R_{17} + R_{18}} + \frac{1}{R_{19}}} + R_{20}} + \frac{1}{\frac{1}{R_{21} + R_{22}} + \frac{1}{R_{24}}} \right]^{-1} \quad (1.56)$$

La résistance thermique équivalente est déterminée en fonction des résistances thermiques des différents éléments tels que définis par le réseau 3D de la Figure 1.21 et les équations suivantes.

$$\begin{aligned} R_1 = 3R_4 &= \frac{4(a_f + g_f)}{\lambda_m h_w g_w} \\ R_2 = R_{15} &= \frac{a_f}{\lambda_{f1} h_f g_w} \\ R_3 = R_{14} &= \frac{g_f}{\lambda_m h_f g_w} \\ R_5 = R_{24} &= \frac{a_f}{\lambda_{f2} a_w h_f} \\ R_6 = 2R_7 = 2R_{12} = 2R_{22} &= \frac{2g_f}{\lambda_m a_w h_f} \\ R_8 = R_{11} &= \frac{g_f}{\lambda_{w1} a_w h_f} \\ R_9 = R_{20} &= \frac{a_f}{\lambda_{w2} a_w h_w} \end{aligned}$$

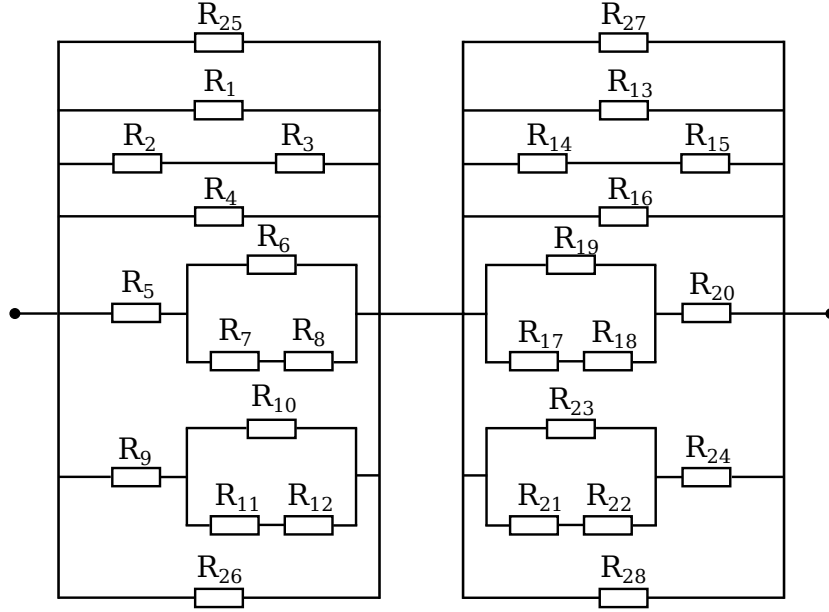


FIGURE 1.21 – Réseau 3D de résistance thermique défini par Ning et Chou [47]

$$R_{10} = R_{19} = \frac{g_f}{\lambda_w a_w \left(h_w - \frac{1}{2} h_f \right)}$$

$$R_{13} = \frac{1}{3} R_{16} = \frac{4(a_f + g_f)}{3\lambda_m g_w h_w}$$

$$R_{17} = \frac{1}{2} R_{23} = \frac{g_f}{\lambda_m a_w h_f}$$

$$R_{18} = R_{21} = \frac{g_f}{\lambda_w a_w h_f}$$

$$R_{25} = R_{26} = R_{27} = R_{28} = \frac{2(a_f + g_f)}{\lambda_m (a_w + g_w) h_m}$$

avec λ_{d1} et λ_{d2} (avec $d = w$ ou f) les coefficients de conductivité thermique des mèches imprégnées dans la direction chaîne.

La conductivité thermique effective dans le sens trame est obtenue de la même manière que celle dans le sens chaîne (équation(1.55)) en interchangeant les paramètres w et f .

Ce modèle est assez complexe à mettre en place car il faut connaître des données paramétriques du renfort et les coefficients de conductivité thermique transverse et longitudinale des mèches imprégnées.

En 1998, un modèle pour prédire la conductivité thermique transverse effective de différents types de renforts est développé par ces mêmes auteurs [48]. Il est défini pour des renforts de type taffetas, sergé, satin irrégulier de 4, satin de 5 et satin de 8. La même démarche que pour le modèle de conductivité thermique dans le plan a été suivie. Ils ont ainsi découpé les différents renforts en plusieurs éléments liés ensemble en série ou en parallèle afin de déterminer un réseau 3D de résistances thermiques équivalentes. Par contre, contrairement au modèle précédent, les

paramètres géométriques sens chaîne et sens trame sont identiques (le renfort est équilibré). Les auteurs ont défini la conductivité thermique transverse effective, λ_{te} , par l'équation(1.57) :

$$\lambda_{te} = \frac{\lambda_m}{\left(1 + \frac{g}{a}\right)^2} \left[\frac{1}{\frac{h_m}{h} + \left(1 - \frac{h_m}{h}\right) \frac{\lambda_m}{\lambda_2}} + \alpha \frac{g/a}{\left(1 + \frac{h_m}{h}\right) + \left(1 - \frac{h_m}{h}\right) \frac{\lambda_m}{\lambda_2}} + \beta \frac{g/a}{\left(1 + \frac{h_m}{h}\right) + \left(1 - \frac{h_m}{h}\right) \frac{\lambda_m}{\lambda_1} + \left(\frac{g}{a}\right)^2} \right] \quad (1.57)$$

Le rapport h_m/h représente le rapport entre l'épaisseur de la couche de matrice h_m (Figure 1.20) et l'épaisseur du stratifié h . Il est défini par l'équation(1.58).

$$\frac{h_m}{h} = 1 - \frac{v_f}{v_{fp}} \left(1 + \frac{g}{a}\right) \quad (1.58)$$

avec v_f la fraction volumique de fibres, v_{fp} la fraction volumique de fibres des mèches imprégnées, g l'espace entre deux mèches et a la largeur d'une mèche.

Les paramètres λ_1 et λ_2 , de l'équation(1.57), sont déterminés par l'équation(1.59) :

$$\lambda_i = \lambda_a \sin^2 \theta_i + \lambda_t \cos^2 \theta_i \quad (1.59)$$

avec λ_a et λ_t respectivement les conductivités thermiques longitudinale et transverse de la mèche. La conductivité thermique longitudinale λ_a est définie par la loi des mélanges :

$$\lambda_a = v_{fp} \lambda_{fa} + (1 - v_p) \lambda_m \quad (1.60)$$

avec λ_{fa} la conductivité thermique longitudinale de la fibre.

Quant à la conductivité thermique transverse, elle est déterminée par l'équation de Clayton, définie par l'équation(1.61) :

$$\lambda_t = \frac{\lambda_m}{4} \left[\sqrt{(1 - v_{fp})^2 \left(\frac{\lambda_{fr}}{\lambda_m} - 1\right)^2 + \frac{4\lambda_{fr}}{\lambda_m}} - (1 - v_{fp}) \left(\frac{\lambda_{fr}}{\lambda_m} - 1\right) \right]^2 \quad (1.61)$$

avec λ_{fr} la conductivité thermique radiale de la fibre. Les paramètres α et λ sont dépendant du type de tissés tels que définis par les équations(1.62) et (1.63) et le Tableau 1.5.

$$\alpha = \frac{132c_1 + 28c_2 + 20c_3 + 12c_4}{39c_1 + 9c_2 + 7c_3 + 8c_4 + 1} \quad (1.62)$$

$$\beta = \frac{24c_1 + 8c_2 + 8c_3 + 20c_4 + 4}{39c_1 + 9c_2 + 7c_3 + 8c_4 + 1} \quad (1.63)$$

Type de tissés	c_i ($i = 1$ à 4)
Satin de 8	$c_1 = c_2 = c_3 = c_4 = 1$
Satin de 5	$c_1 = 0, c_2 = c_3 = c_4 = 1$
Satin irrégulier de 4	$c_1 = c_2 = 0, c_3 = c_4 = 1$
Sergé	$c_1 = c_2 = c_3 = 0, c_4 = 1$
Taffetas	$c_1 = c_2 = c_3 = c_4 = 0$

TABLEAU 1.5 – Valeurs des paramètres c_i en fonction du type de tissés

Ces modèles sont complexes à mettre en place car ils dépendent de nombreux facteurs géométriques tels que la largeur des mèches, leur épaisseur, l'épaisseur de matrice, etc. Ces différents paramètres sont grandement fonction du processus de fabrication et de la phase de mesure permettant de les déterminer. L'utilisation de ces modèles nécessite donc de connaître les données géométriques des renforts que nous souhaitons utiliser, donc une analyse approfondie de ces caractéristiques. Dans le cas de notre projet, où le type de renforts tissés n'est pas encore défini et arrêté, il est difficile de pouvoir exploiter de tels modèles.

Une fois les modèles analytiques définis, nous souhaitons pouvoir les corrélérer avec des données expérimentales. La prochaine partie présente donc deux méthodes de mesures permettant de caractériser les propriétés thermiques des échantillons.

1.4 Méthodes de mesures

Nous avons constaté que les méthodes de caractérisation de la conductivité thermique les plus souvent utilisées dans la littérature [53–56] sont : la méthode de la Source Plane Transitoire (ou *Hot Disk*) ou la méthode flash. Cette section présente donc les principes sur lesquels se basent ces deux méthodes.

1.4.1 Source Plane Transitoire

Gustavsson [57,58] présente un principe de mesure en régime transitoire permettant de déterminer la diffusivité thermique, la conductivité thermique et la chaleur spécifique d'un échantillon, la Source Plane Transitoire (*Transient Plane Source*), connue aussi sous le nom de *Hot Disk* ou *Hot Square*, en fonction de la forme de la sonde. Le principe est de venir placer une sonde entre deux échantillons identiques d'un même matériau (Figure 1.22). La sonde permet de chauffer par effet Joule une spirale d'alliage de nickel enrobée dans un film de kapton ou de mica, en

imposant une puissance électrique à ses bornes. La variation de la résistivité du nickel est suffisamment élevée (de l'ordre de $0.004 K^{-1}$) pour permettre une mesure précise de la température de la spirale au cours de l'essai.

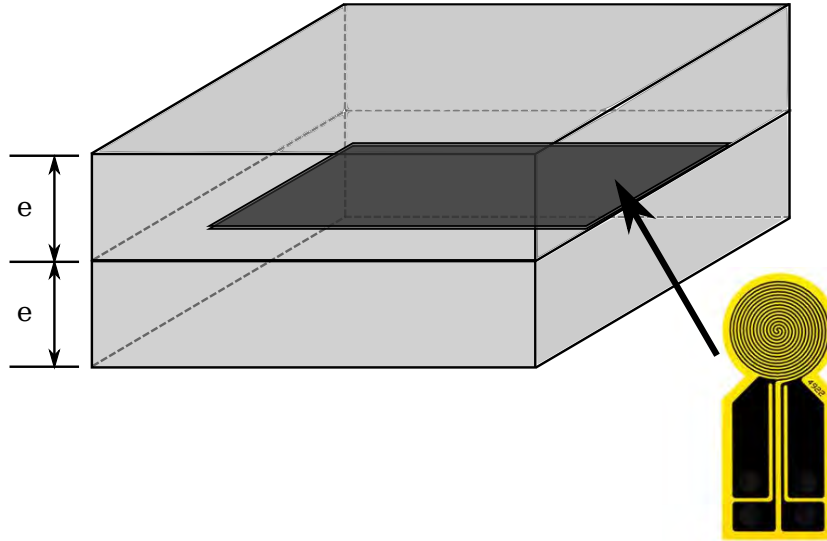


FIGURE 1.22 – Hot Disk

Gustavsson pose l'hypothèse que la sonde peut être considérée en contact avec un solide infini ou semi-infini. Pour que cette hypothèse soit valable, la durée de l'essai doit être choisie de manière à ce que les bordures extérieures de l'échantillon ne soient pas influencées par l'augmentation de la température de la sonde. Cela implique que plus le matériau testé sera conducteur plus l'échantillon nécessitera d'être grand pour satisfaire ces conditions. Pour cela Gustavsson a défini un paramètre de profondeur Δ (équation(1.64)) indiquant jusqu'où le pulse de chauffe s'est propagé dans l'échantillon durant un temps t .

$$\Delta = C\sqrt{at} \quad (1.64)$$

avec C une constante, t le temps total du transitoire et a la diffusivité du matériau. Il est important de s'assurer que Δ est inférieur à la distance entre la source de chaleur et la plus proche limite de l'échantillon. La gamme de mesure de conductivité thermique de ce type de matériel varie de 0.01 à $100 W.m^{-1}.K^{-1}$

La principale problématique de cette méthode est la validation du paramètre Δ . En effet, plus un échantillon est conducteur, plus ses dimensions doivent être importantes pour pouvoir rester dans le domaine de validité de la mesure. Cela implique qu'il faudra une quantité conséquente de matériau étant donné que nous avons besoin de deux échantillons de mêmes dimensions pour pouvoir caractériser le matériau. De plus, c'est une méthode par contact, c'est-à-dire qu'il y a un contact entre le matériau d'étude et la source de chaleur du dispositif de mesure. Se pose donc la question de la résistance thermique de contact entre les deux.

1.4.2 Méthode Flash

La méthode flash est une mesure indirecte de la conductivité thermique. En effet, ce dispositif effectue une mesure de diffusivité thermique et la conductivité thermique de l'échantillon est déduite de l'équation(1.65). La gamme de mesure de la diffusivité est comprise entre 0.01 et $1000 \text{ mm}^2.\text{s}^{-1}$.

$$\lambda(T) = a(T)C_p(T)\rho(T) \quad (1.65)$$

avec a la diffusivité thermique de l'échantillon ($\text{mm}^2.\text{s}^{-1}$), C_p la chaleur spécifique de l'échantillon ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$) et ρ la masse volumique de l'échantillon (kg.m^{-3}).

La figure 1.23 présente un exemple de dispositif de mesure par méthode flash de chez NETZSCH.

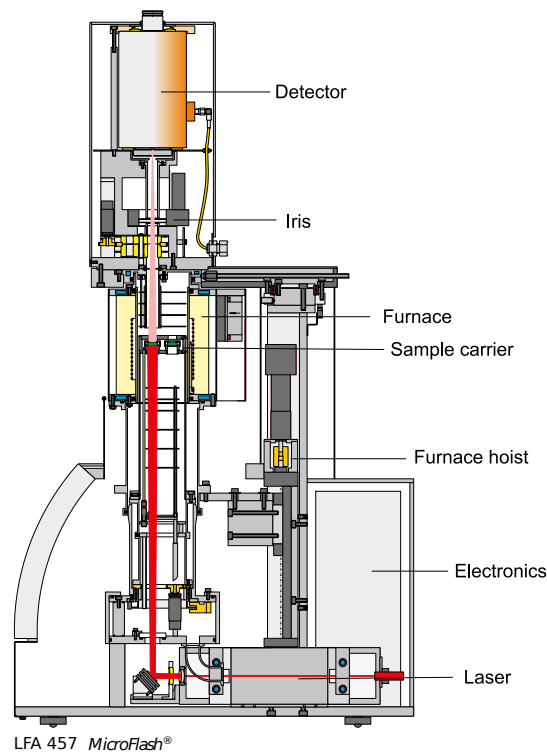
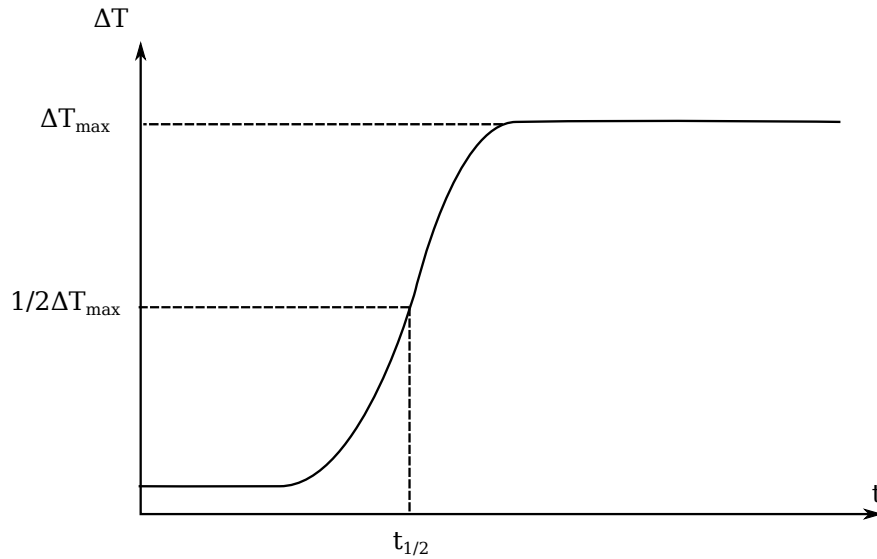


FIGURE 1.23 – Exemple d'un dispositif de mesure par méthode flash : LFA 457 NETZSCH

Ce principe de mesure a été introduit par Parker et al. [59] en 1961. Un pulse de chaleur de courte durée chauffe la face avant d'un échantillon. Une mesure de l'augmentation de la température en face arrière, à l'aide d'un détecteur infrarouge de InSb (antimoniure d'indium), permet de déterminer la diffusivité thermique de l'échantillon en s'appuyant sur des modèles mathématiques.

FIGURE 1.24 – Détermination de $t_{1/2}$

En considérant qu'il n'y a aucune perte de chaleur, Parker et al. ont défini l'augmentation de la température à tout instant t par l'équation(1.66).

$$\frac{T(L,t)}{T_{max}} = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp(-n^2 w) \quad (1.66)$$

$$\text{avec } w = \frac{\pi a t}{L^2}$$

T_{max} étant la température maximum sur la face arrière de l'échantillon, a la diffusivité de l'échantillon et L l'épaisseur de l'échantillon.

Quand la température en face arrière $T(L,t)$, atteint la moitié de la température maximum, T_{max} , la diffusivité thermique se définit par :

$$a = 1.37 \frac{L^2}{\pi^2 t_{1/2}} \quad (1.67)$$

$t_{1/2}$ étant le temps nécessaire pour que la face arrière de l'échantillon atteigne $T_{max}/2$.

La figure 1.24 montre la courbe théorique de l'augmentation de la température en face arrière de l'échantillon permettant de déterminer $t_{1/2}$.

En 1963, Cowan [60] corrige le modèle de Parker et al. en prenant en compte les pertes de chaleur par radiation et convection, des deux faces de l'échantillon. Une des approches qu'il présente s'appuie sur des courbes théoriques (Figure 1.25). Cette méthode permet de déterminer, de façon approchée et en ayant une connaissance approximative de la valeur des pertes de chaleurs, la valeur de la diffusivité thermique de l'échantillon en se basant sur les rapports $\Theta_{5t_{1/2}}/\Theta_{t_{1/2}}$ ou $\Theta_{10t_{1/2}}/\Theta_{t_{1/2}}$. Θ étant l'augmentation de la température aux temps $t_{1/2}$, $5 * t_{1/2}$ ou $10 * t_{1/2}$.

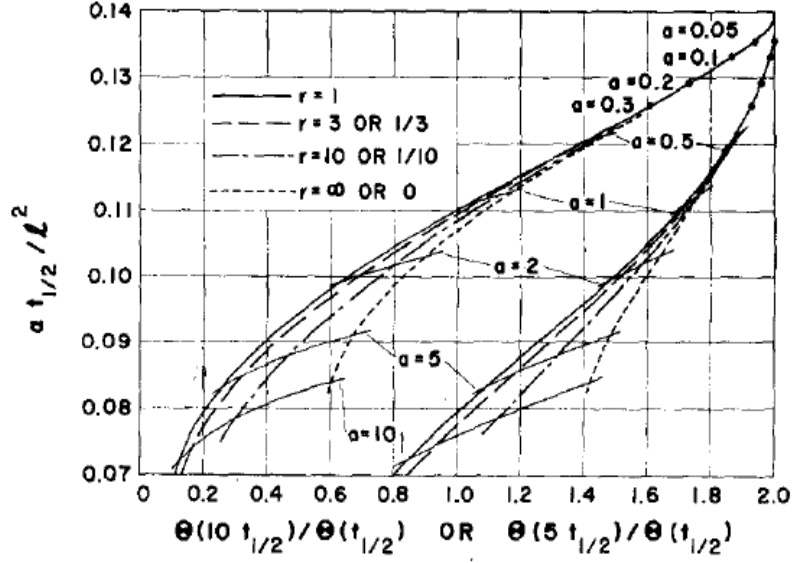


FIGURE 1.25 – Courbes théoriques développées par Cowan [60]

En 1963 également, Cape et Lehman [61] développent un modèle prenant en compte les pertes de chaleur radiales et faciales pour un échantillon d'épaisseur L et de rayon R_s . L'équation du transfert thermique est définie par l'équation(1.68).

$$-\nabla^2 T(x, r, t) + \frac{1}{a} \frac{\partial T(x, r, t)}{\partial t} = \frac{1}{\lambda} q(x, r, t) \quad (1.68)$$

L'équation(1.68) est résolue en posant comme condition initiale l'équation(1.69) et comme conditions aux limites les équations(1.70), (1.71) et (1.72).

$$T(x, 0) = \frac{Q_0}{\rho C_p L} \quad (1.69)$$

avec Q_0 le flux de chaleur, ρ la masse volumique de l'échantillon, C_p la chaleur spécifique de l'échantillon et L l'épaisseur de l'échantillon.

$$\frac{\partial T(0, r, t)}{\partial x} = \frac{1}{\lambda} 4\sigma\epsilon_x T_0^3 T(0, r, T) \quad (1.70)$$

$$\frac{\partial T(L, r, t)}{\partial x} = \frac{1}{\lambda} 4\sigma\epsilon_x T_0^3 T(L, r, T) \quad (1.71)$$

$$\frac{\partial T(0, r, t)}{\partial r} = \frac{1}{\lambda} 4\sigma\epsilon_r T_0^3 T(x, R_s, T) \quad (1.72)$$

L'évolution de la température dans l'échantillon en fonction du rayon r au temps t est définie par l'équation(1.73).

$$T(r, t) = T_{max} \sum_{m=0}^{\infty} C_m X_m \sum_{i=0}^{\infty} D_i(r, Y_r) \int_0^t d\tau W(\tau) \exp[w_{im}(t - \tau)/t_c] \quad (1.73)$$

avec $C_m X_m$ la contribution des pertes de chaleur faciales, $D_i(r, Y_r)$ la contribution des pertes de chaleur radiales, $W(\tau)$ la perte d'énergie par unité de surface et t_c le temps caractéristique.

Les avantages de ce type de mesure sont :

- des temps de mesures très rapides. Cela permet d'avoir un nombre important de mesures en un temps très court.
- la taille des échantillons étant faible (de 10 mm à 25.4 mm de diamètre dans le cas des dispositifs NETZSCH), il n'est pas nécessaire d'avoir beaucoup de matériau pour pouvoir le caractériser.
- les temps de mesures étant faibles et tant que la température de mesure reste inférieure à 1000 °C, les effets des pertes de chaleur sont minimisés.
- c'est une méthode sans contact. En effet, il n'y a pas de contact entre le matériau d'étude et la source de chaleur du dispositif de mesure. Cela permet de s'affranchir de la résistance de contact.

1.5 Conclusion

Cet état de l'art permet de mettre en évidence les différents modèles développés ainsi que leurs hypothèses pour décrire au mieux le comportement thermique de matériaux composites. De nombreux modèles analytiques ont été développés pour prédire la conductivité thermique effective de matrice chargée de particules. Les principales difficultés mises en avant avec cette étude sont la problématique de connaître la répartition des particules dans la matrice (avec la création d'agglomérats notamment), évaluer l'influence de leur forme ou de leur facteur de forme, déterminer l'influence et l'ordre de grandeur d'une résistance thermique de contact entre les particules et la matrice.

D'un point de vue des modèles analytiques sur les renforts nous n'avons pu mettre en évidence que des modèles sur des renforts de type unidirectionnels ou 2D. Ces modèles sont difficilement exploitables car ils nécessitent de connaître les dimensions réelles de l'architecture du renfort, ce qui est impossible dans le cas d'une pré-étude sans matériau final réel. De plus, ces dimensions sont directement liées au processus de fabrication d'où la difficulté d'obtenir des mesures "standards".

Certains de ces modèles différencient, au niveau de la fibre, une conductivité thermique longitudinale et une conductivité thermique transverse. La valeur de la conductivité thermique longitudinale est généralement donnée par le fournisseur cependant le procédé de mesure n'est jamais explicité, ces valeurs sont donc à pondérer. Par contre, la valeur de la conductivité thermique transverse n'est jamais fournie. Cependant, dans la littérature certains présentent des valeurs de conductivité thermique transverse de l'ordre de 1/10 à 1/100 de fois la valeur de la conductivité thermique longitudinale en fonction du type de fibre [46, 52]. Ces paramètres intrinsèques au matériau restent aujourd'hui encore discutés.

Aujourd'hui il existe de nombreuses méthodes pour mesurer la conductivité thermique d'un matériau. Ces méthodes fonctionnent très bien sur des matériaux homogènes et isotropes. Dans

notre cas les matériaux sont soit hétérogènes mais isotropes (matrice dopée) soit hétérogènes et anisotropes (composite final). Il faudra donc valider ces moyens de mesures sur les matériaux développés au cours du projet.

Il n'a pas été mis en évidence de modèle prédisant la conductivité thermique d'un composite constitué d'une matrice chargée de particules dopantes et de renforts de fibres longues. De plus, au vue de cet état de l'art une problématique industrielle est clairement mise en évidence. Nous souhaitons, à terme, injecter une matrice dopée dans des tissus 2D ou 3D. Il nous faudra donc prendre en compte lors du choix du type de particules, du type d'architecture du renfort ou encore du type de procédé de fabrication, les risques de filtrations par les renforts de la matrice dopée.

En conclusion, les modèles analytiques permettant de prédire la conductivité thermique d'une matrice dopée vont nous permettre de définir quels paramètres sont indispensables à la détermination de la conductivité thermique et ainsi de pouvoir développer un modèle numérique générant des particules réparties aléatoirement dans un V.E.R.

Chapitre 2

Matrice chargée - Modélisation Numérique

Sommaire

2.1	Objectif - Introduction	51
2.2	Modèle de distribution aléatoire de sphères	52
2.2.1	Définition du modèle	52
2.2.2	Étude de sensibilité	57
2.2.2.1	Taille du V.E.R et maillage	57
2.2.2.2	Influence des conditions aux limites	59
	Isotropie du modèle	59
	Influence de la valeur de la densité de flux de chaleur ϕ_S	60
2.2.2.3	Intérêt de la distribution aléatoire	66
2.2.2.4	Influence de la taille des particules	68
2.2.2.5	Influence de la fraction volumique de particules	68
2.2.3	Comparaison entre les modèles numériques et analytiques	70
2.3	Modèle de distribution aléatoire d'ellipsoïdes	72
2.3.1	Modèle 2D	73
2.3.2	Modèle 3D	80
2.4	Conclusion	83

2.1 Objectif - Introduction

COMME nous l'avons vu dans le chapitre 1 dédié à l'état de l'art, de nombreux modèles analytiques ont été développés pour prédire le comportement thermique de matériaux composites particulaires. Un des objectifs du projet THEOREM est de pouvoir choisir les charges dopantes permettant d'améliorer au mieux la conductivité thermique d'un matériau composite dans toutes les directions de l'espace. Nous avons donc souhaité développer un outil numérique nous permettant de :

- à une échelle micro mécanique : prédire les propriétés thermiques et mécaniques d'une matrice dopée.
- à une échelle macro mécanique : prédire ces mêmes propriétés pour un matériau composite constitué de renforts en fibres de carbone et d'une matrice chargée de particules dopantes.

Souhaitant à terme étudier les couplages thermiques et mécaniques sur nos modèles nous avons développé cette étude sur COMSOL MULTIPHYSICS 4.3.b. Comme nous le verrons par la suite, afin de pouvoir utiliser au mieux COMSOL MULTIPHYSICS, nous avons développé nos programmes sous Octave et en langage JAVA. Dans le cadre du projet THEOREM, nous devons prendre en compte la réalité de production et les méthodes utilisées pour la dispersion de particules dans une résine liquide. Ces méthodes de dispersions décrites dans le chapitre 3, impliquent une distribution aléatoire des particules dans la matrice. Nous allons donc modéliser la dispersion avec distribution aléatoire des positions des particules pouvant être contenues dans une enveloppe sphérique mais également pouvant être contenues dans une enveloppe ellipsoïdale. Ces deux géométries - en jouant sur les rayons et longueurs des grands et petits axes - sont à mêmes de circonscrire de très nombreuses particules dopantes, hors plans de graphènes ou nanotubes de carbone. Il convient également de souligner que nous avons souhaité - c'est un objectif fort de ce travail - ne pas avoir de périodicité dans les V.E.R. employés pour modéliser la matrice polymérique chargée. La périodicité n'intervient qu'à une échelle supérieure où nous considérons les propriétés homogénéisées de la matrice dans les plis du matériau composite (avec fibres).

2.2 Modèle de distribution aléatoire de sphères

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, des études ont été faites pour déterminer des algorithmes permettant d'obtenir une répartition pseudo-aléatoire dans un V.E.R. défini. La fraction volumique de particules que nous souhaitons atteindre ne dépassant pas les 20% nous sommes basés sur un algorithme de type RSA (Random Sequential Adsorption).

2.2.1 Définition du modèle

Une première étude a donc été menée sur des particules sphériques ayant un même diamètre et étant dispersées aléatoirement dans un V.E.R cubique sans conditions de périodicité. Il est connu que la taille des particules n'est pas unique et constante. Généralement quand des particules de taille micronique ou submicronique sont considérées, les dimensions réelles des particules suivent une distribution Gaussienne. L'hypothèse que nous posons est donc assez sévère mais nécessaire pour faire les premières simulations.

Avec le développement de ce modèle nous souhaitons comprendre les comportements thermiques et thermomécaniques de notre matrice chargée de particules dopantes. Nous avons choisi de développer notre modèle sur COMSOL MULTIPHYSICS qui nous permettra à terme de pouvoir simuler des couplages thermiques et mécaniques.

Nous avons donc défini un V.E.R. de cette matrice dopée en prenant en compte les effets de la mise en œuvre, c'est-à-dire les effets du mélangeage sur la répartition des charges dans la matrice (Figure 2.1).

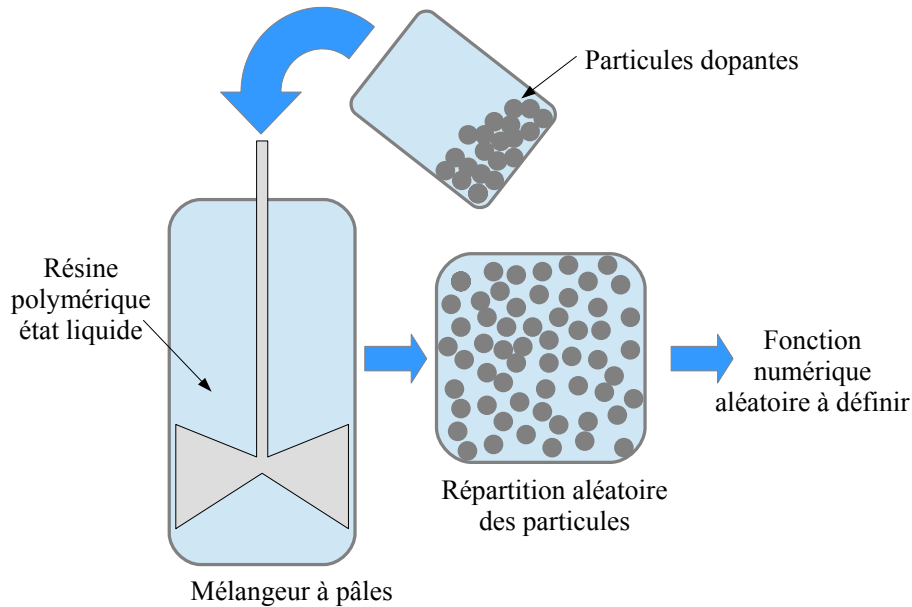


FIGURE 2.1 – Effet de la mise en œuvre sur la dispersion des particules dans la matrice

Afin de pouvoir générer un modèle de répartition aléatoire de sphères dans un V.E.R cubique nous avons développé un algorithme (Figure 2.2) permettant un tirage pseudo-aléatoire du centre des sphères en prenant en compte un paramètre de non collision afin d'éviter toute interférence des particules entre elles.

La dispersion de nos particules dans le V.E.R. étant considérée aléatoire, la création géométrique du V.E.R. n'est pas faisable directement dans le logiciel. Le logiciel COMSOL MULTIPHYSICS s'appuie sur un développement en langage JAVA. L'algorithme présenté Figure 2.2 a donc été développé grâce à une programmation en base JAVA. Le programme ainsi développé est présenté en détails en annexe A.

Ainsi, l'opérateur définit la fraction volumique de particules dopantes à introduire dans la matrice v_p , le rayon moyen des particules, r et la longueur du côté du V.E.R, L . En fonction de la taille du V.E.R., du rayon et de la fraction volumique des particules, le programme calcule le nombre de sphères à répartir dans le V.E.R. La fonction aléatoire que nous avons utilisée est définie par la fonction *random* de Java. Les positions des centres des sphères sont tirées de manière à autoriser les sphères à sortir d'une valeur de rayon du V.E.R. (Figure 2.3).

Un paramètre de collision est défini afin d'éviter toutes superpositions (ou interférences) des particules entre elles, comme cela serait le cas dans la réalité. Dans le cas de particules sphériques la définition de ce paramètre est très simple. En effet, si nous considérons que les particules ne doivent pas entrer en interférence, mais par contre, peuvent être tangentes les unes aux autres, il suffit de vérifier que la distance entre les centres des sphères est supérieure ou égale au diamètre

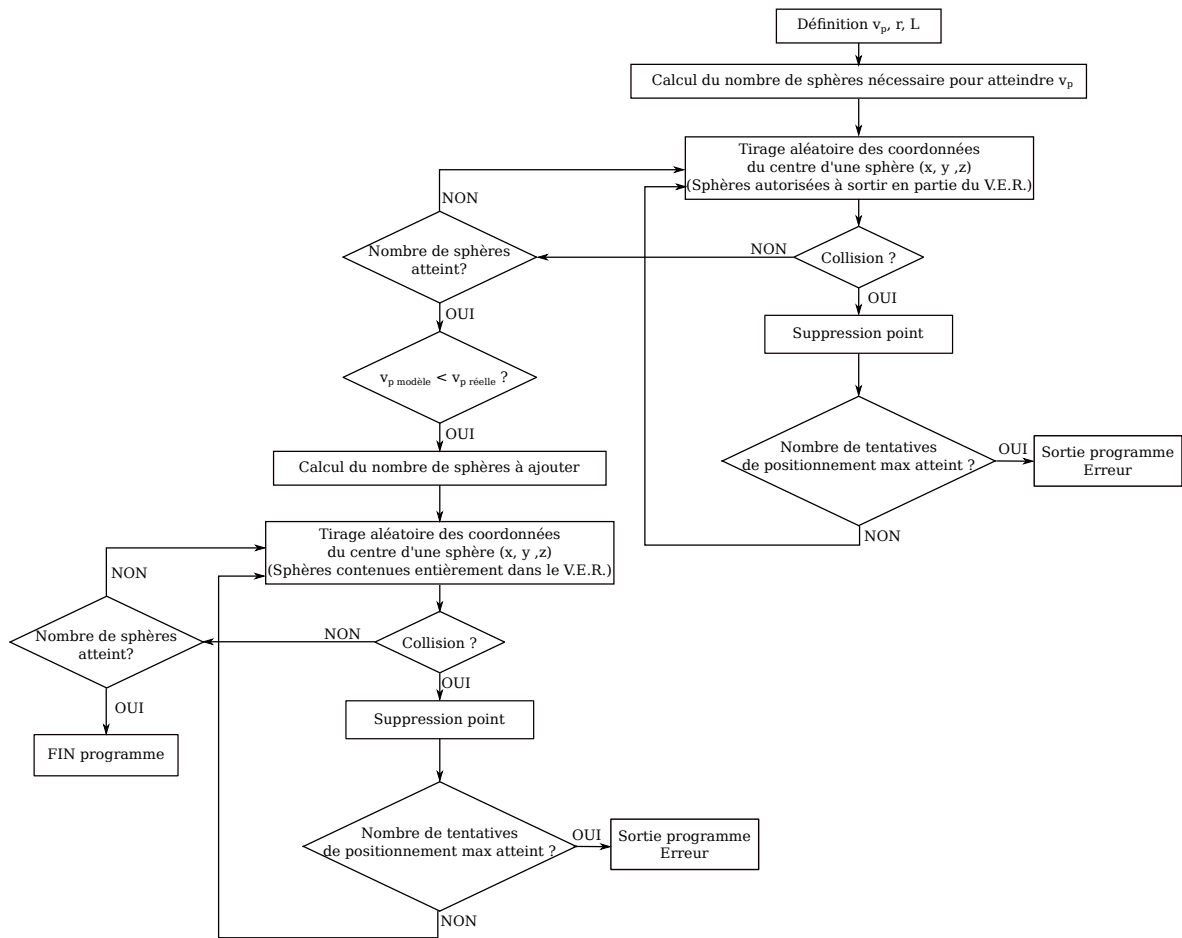


FIGURE 2.2 – Algorithme de génération de particules sphériques dans un V.E.R. cubique avec des positions aléatoires

des sphères. La détermination du paramètre de non collision, p_c , se fait entre deux sphères et est le calcul de la norme du vecteur $\overrightarrow{O_1O_2}$ (équation(2.1))(Figure 2.4).

$$p_c = \sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2} \quad (2.1)$$

avec x_1, y_1, z_1 , les coordonnées du centre O_1 de la sphère S_1 et x_2, y_2, z_2 , les coordonnées du centre O_2 de la sphère S_2 .

Si le paramètre, p_c , est inférieur au diamètre des sphères il y a collision. Si le paramètre, p_c , est supérieur au diamètre des sphères il n'y a pas collision.

Si une collision est détectée, la dernière position tirée est supprimée. Un paramètre représentant le nombre de tentatives maximum permettant de positionner une sphère a été défini. En effet, de par le fait que nous effectuons un tirage pseudo-aléatoire de toutes les positions, il peut arriver, dans certains cas où la fraction volumique est élevée, que la première position tirée ne permette pas un remplissage optimal. D'où la nécessité de limiter le nombre de tentatives maximum afin d'éviter la création d'une boucle infinie dans le programme. Ainsi, si le nombre de tentatives maximum est atteint le programme s'arrête et renvoie un message d'erreur. Par

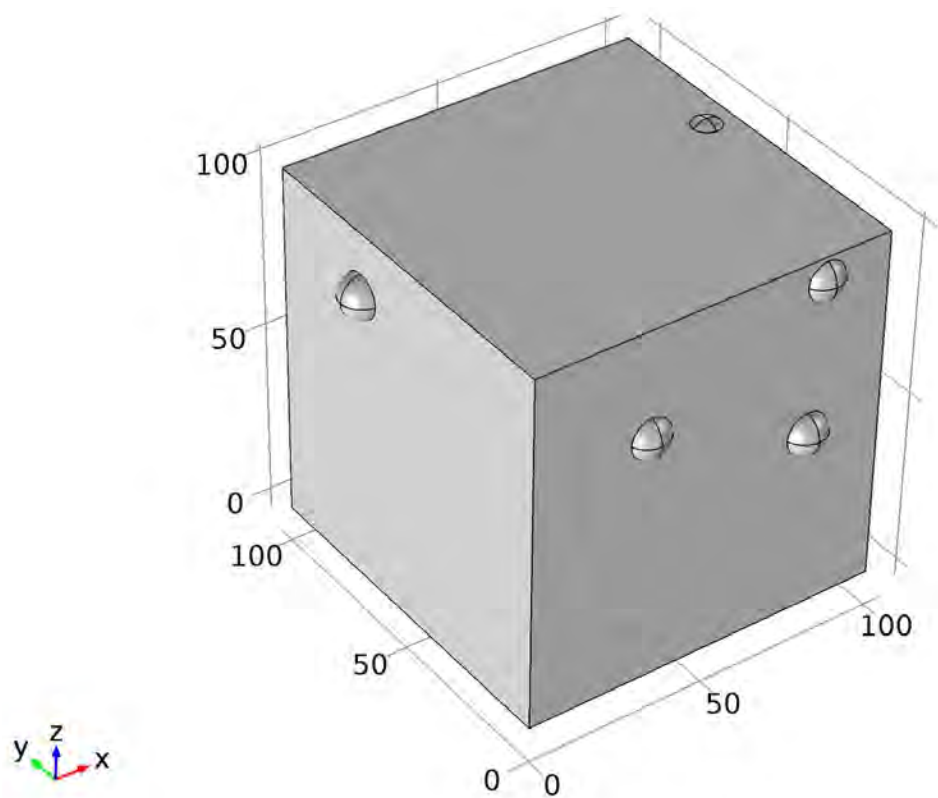


FIGURE 2.3 – Exemple d'un tirage aléatoire laissant dépasser les sphères du V.E.R.

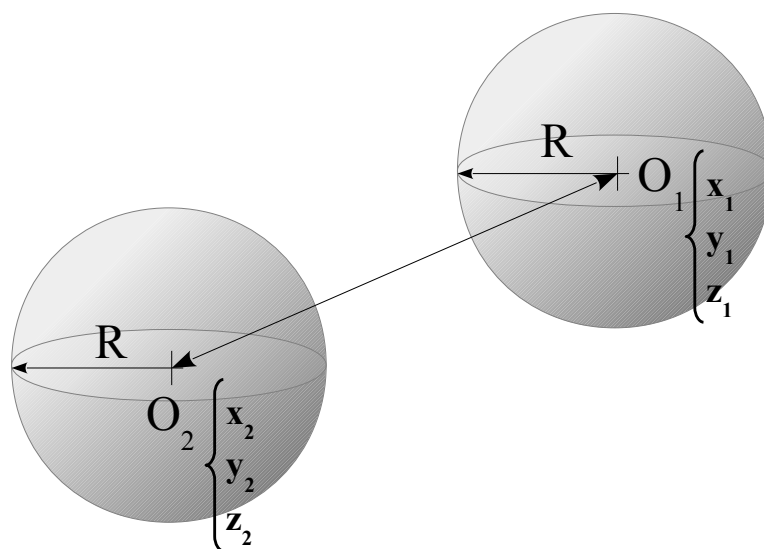


FIGURE 2.4 – Représentation des paramètres géométriques à prendre en compte pour le calcul du paramètre de non collision dans le cas du modèle sphère

contre, si le nombre de tentatives maximum n'est pas atteint la position est tirée à nouveau. Le programme effectue une boucle jusqu'à atteindre le nombre de sphères nécessaire.

Étant donné que le programme a été construit de manière à laisser les sphères sortir d'une valeur de rayon du V.E.R., la fraction volumique du modèle à la fin de cette boucle se retrouve être inférieure à la fraction volumique demandée par l'opérateur. Afin de se rapprocher au maximum de la fraction volumique souhaitée, le programme compare la fraction volumique que nous venons d'atteindre à celle demandée. En fonction de cette différence le programme détermine un nombre de sphères à ajouter. Et contrairement à la boucle précédente, ici, le tirage se fait sur un intervalle restreint ne permettant pas aux sphères de sortie partielle du V.E.R. La vérification de collision entre les particules se fait de la même manière qu'expliqué précédemment. Le programme ne s'arrête qu'une fois le nombre de sphères à répartir atteint.

La Figure 2.5 présente un exemple de V.E.R. généré par l'algorithme.

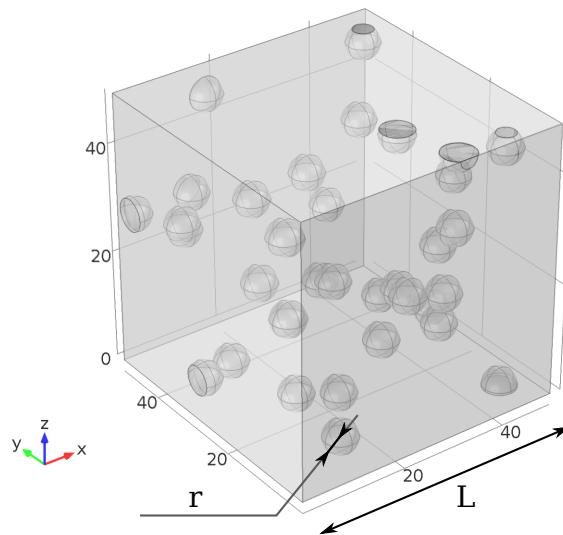


FIGURE 2.5 – Exemple de V.E.R. généré

Le tirage aléatoire des coordonnées du centre d'une sphère s'appuie sur la fonction **random** de JAVA. La fonction **random** génère une série de nombres aléatoires suivant une loi uniforme sur l'intervalle (0,1). Nous avons deux phases de dispersion :

- la première où les conditions de dispersion des sphères leurs permettent de sortir du V.E.R. d'au maximum la valeur d'un rayon. Les centres des sphères sont dispersés dans un cube de côté L ;
- pour la deuxième phase de dispersion, la dispersion des sphères se fait à l'intérieur strictement d'un cube de côté L . Les centres des sphères sont donc répartis dans un cube de côté $(L - 2r)$.

Dans cette étude nous nous sommes seulement penchés sur l'aspect thermique du modèle. Dans COMSOL MULTIPHYSICS la simulation du transfert de chaleur est basée sur la loi de Fourier telle que définie par l'équation(2.2).

$$\vec{\phi}_S = -\lambda \overrightarrow{\text{grad}}(T) \quad (2.2)$$

avec $\vec{\phi}_S$ la densité de flux de chaleur ($W.m^{-2}$), λ la conductivité thermique effective du composite ($W.m^{-1}.K^{-1}$) et T la température (K). La conductivité thermique effective du composite est donc directement déduite de cette équation.

2.2.2 Étude de sensibilité

Afin de valider notre modèle, nous avons effectué une étude de sensibilité dans le but de regarder l'influence sur le coefficient de conductivité thermique de différents paramètres tels que :

- La taille du V.E.R cubique caractérisée par la longueur L (2.2.2.1)
- La taille du maillage (section 2.2.2.1)
- La distribution des particules (section 2.2.2.3)
- La taille des particules (section 2.2.2.4)
- La fraction volumique de particules (section 2.2.2.5)

sur le coefficient de conductivité thermique effectif.

2.2.2.1 Taille du V.E.R et maillage

La principale difficulté dans la détermination des dimensions de notre V.E.R est que notre matrice chargée n'existe pas. Nous ne pouvons donc pas nous baser sur des micrographies du matériau pour en déterminer les dimensions comme c'est le cas dans la plupart des études. Nous avons donc basé la taille de notre V.E.R. en fonction de la taille de nos particules. Cependant cette condition n'est pas suffisante pour définir les dimensions adéquates du V.E.R. En effet, la fraction volumique à atteindre est aussi un paramètre clé dans la détermination des dimensions du V.E.R. Si nous prenons l'exemple d'une sphère de $6 \mu m$ de diamètre, placée dans un V.E.R cubique de côté L dont la valeur de L dépend de la fraction volumique, v_p , telle que définie par l'équation(2.3), nous obtenons les valeurs répertoriées dans le tableau 2.1.

$$L = \sqrt[3]{\frac{4\pi N r^3}{3v_p}} \quad (2.3)$$

avec N le nombre de sphères (ici $N = 1$), r le rayon moyen des particules (ici $r = 3 \mu m$) et v_p la fraction volumique de particules.

v_p (%)	L (μm)
3	15.56
30	7.22
50	6.09

TABLEAU 2.1 – Valeur de L en fonction de la fraction volumique v_p

Afin d'étudier l'influence de la taille du V.E.R sur le coefficient de conductivité thermique, la longueur, L , des côtés du V.E.R définissant la taille du V.E.R est prise à $25 \mu m$, $50 \mu m$, et $100 \mu m$, le diamètre moyen des particules est pris à $6 \mu m$ et la fraction volumique est fixée à 3%.

Nous nous plaçons dans le cas d'une matrice époxy chargée de particules d'aluminium car la forme de ces particules peut être assimilée à une sphère. Les conditions aux limites utilisées sont les suivantes :

- coefficient de conductivité thermique de la matrice : $0.2 W.m^{-1}.K^{-1}$ (valeur classique pour de la résine époxy)
 - coefficient de conductivité thermique des particules : $237 W.m^{-1}.K^{-1}$ (nous avons considéré ici des particules d'aluminium)
 - rayon moyen des particules : $3 \mu m$
 - température initiale : $T_0 = 0 K$
 - densité de flux de chaleur (3 valeurs testées) : $\Phi_S = 1 W.m^{-2}$, $100 W.m^{-2}$, $1000 W.m^{-2}$
- En ce qui concerne le maillage, il est constitué d'éléments tétraédriques (Figure 2.6).

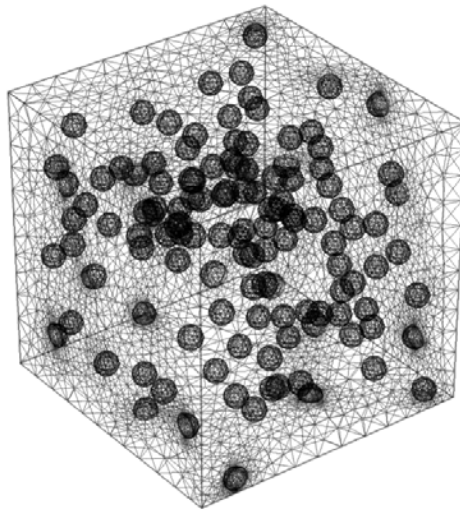


FIGURE 2.6 – Exemple de maillage

Pour prendre en compte la taille du maillage et afin de pouvoir comparer nos différents modèles quelle que soit la taille du V.E.R., un nouveau paramètre a été défini : le volume moyen par élément V_{moy} donné par l'équation(2.4). Ce paramètre est déterminé par le rapport du volume total du modèle, V_{total} , sur le nombre total d'éléments du maillage, N_e . Ainsi plus la taille du maillage est grossière plus le volume moyen par élément est élevé.

$$V_{moy} = \frac{V_{total}}{N_e} \quad (2.4)$$

avec V_{moy} le volume moyen par élément, V_{total} le volume total du V.E.R. et N_e le nombre d'éléments du maillage.

2.2.2.2 Influence des conditions aux limites

Afin de pouvoir déterminer de manière simple la conductivité thermique effective du composite nous avons défini des conditions aux limites qui ne sont pas représentatives de l'environnement futur de notre matériau mais permettent de simplifier le gradient de température et de faciliter la résolution de l'équation de Fourier présentée précédemment. Ainsi, nous avons imposé une température $T_0 = 0\text{ K}$ sur une face et une densité de flux de chaleur ϕ_S sur la face opposée comme le montre la Figure 2.7.

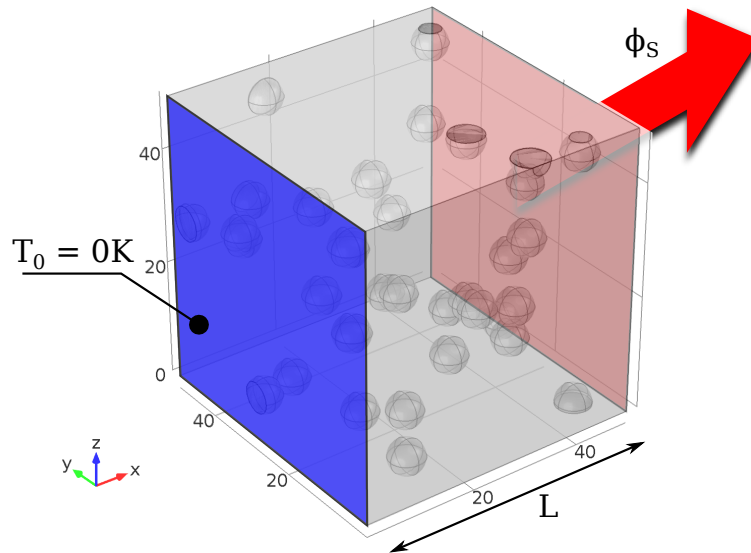


FIGURE 2.7 – Conditions aux limites

L'influence des conditions aux limites sur le coefficient de conductivité thermique de notre matrice dopée est mise en évidence selon deux points :

- vérifier l'isotropie de notre modèle ;
- voir l'influence de la valeur de la densité de flux de chaleur ϕ_S imposée.

Isotropie du modèle Les charges dopantes étant réparties aléatoirement dans la matrice, le comportement thermique de la matrice dopée est supposé isotrope, donc la conductivité thermique effective de cette matrice doit être identique quel que soit l'axe suivant lequel sont imposées les conditions aux limites.

La figure 2.8 montre l'influence de l'axe selon lequel sont imposées les conditions aux limites sur le coefficient de conductivité thermique en fonction du volume moyen par élément. Les données d'entrée pour la génération de ce modèle sont :

- un rayon moyen de particules $R = 3\ \mu\text{m}$
- une fraction volumique de particule $v_p = 3\%$
- un V.E.R. de côté $L = 25\ \mu\text{m}$
- un coefficient de conductivité thermique de la matrice $\lambda_m = 0.2\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ (valeur classique pour de la résine époxy)
- un coefficient de conductivité thermique des particules $\lambda_p = 237\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ (nous avons considéré ici des particules d'aluminium)

– une densité de flux de chaleur $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$

Deux générations aléatoires de sphères, M_1 et M_2 , ont été simulées afin de s’affranchir des effets de la répartition des sphères dans le V.E.R. Nous constatons ainsi que quel que soit l’axe selon lequel sont imposées les conditions aux limites, le coefficient de conductivité thermique ne varie pas significativement. L’hypothèse de matériau isotrope est ainsi vérifiée et l’utilisation de l’équation de Fourier pour déterminer le coefficient de conductivité thermique des modèles de matrice dopée est validée.

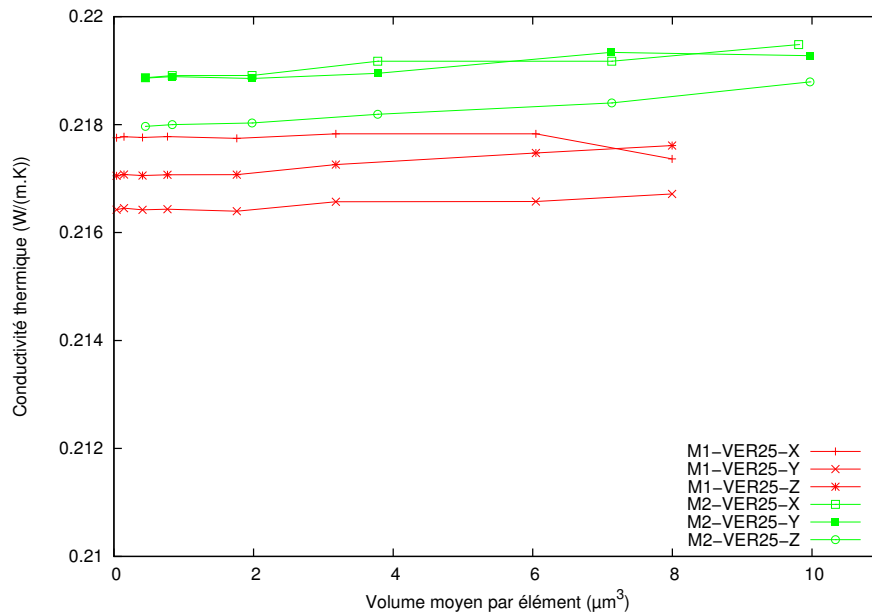


FIGURE 2.8 – Influence des conditions aux limites sur le coefficient de conductivité thermique, suivant l’axe selon lequel elles sont imposées

Influence de la valeur de la densité de flux de chaleur ϕ_S Afin d’étudier l’influence de la valeur de la densité de flux de chaleur sur le coefficient de conductivité thermique nous avons imposé trois valeurs de densité de flux : $\phi_S = 1, 100$ ou 1000 W.m^{-2} .

Les figures 2.9, 2.10, 2.11 montrent l’évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la densité de flux de chaleur appliquée, de la taille du V.E.R et du volume moyen par élément, pour une fraction volumique de particules $v_p = 3\%$, un rayon moyen de particules $R = 3 \mu\text{m}$ et pour différents tirages aléatoires de la distribution des particules.

Sur la figure 2.9a, pour un V.E.R. de $25 \mu\text{m}$ de côté nous constatons que dans le cas des densités de flux de chaleur $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$ et $\phi_S = 100 \text{ W.m}^{-2}$, le coefficient de conductivité thermique diverge pour un volume moyen par élément inférieur à $1 \mu\text{m}^3$, ce qui correspond, dans ce cas, à un maillage d’environ 20 000 éléments (Figures 2.12c et 2.12d). La figure 2.9b, qui représente un zoom de la figure 2.9a, nous montre que le coefficient de conductivité thermique varie entre $0.216 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ et $0.220 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ pour un volume moyen par élément variant entre 1 et $8 \mu\text{m}^3$, soit un maillage compris entre 2 000 et 20 000 éléments (Figure 2.12).

Sur la figure 2.10a, pour un V.E.R. de $50 \mu\text{m}$ de côté nous constatons que dans le cas des densités de flux de chaleur $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$ et $\phi_S = 100 \text{ W.m}^{-2}$, le coefficient de conductivité

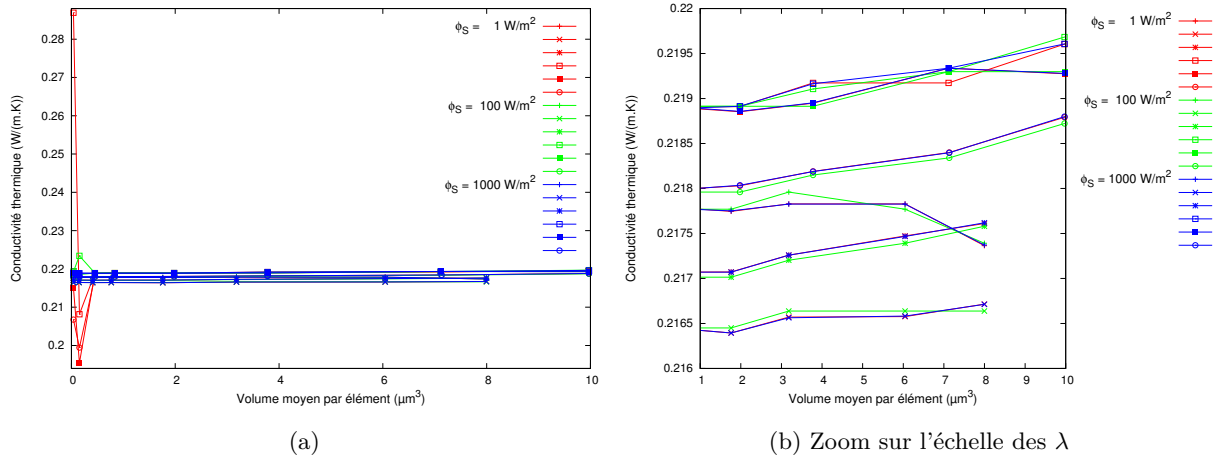


FIGURE 2.9 – Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la densité de flux appliquée et de la taille du maillage pour un V.E.R. de $25 \mu\text{m}$ de côté pour différentes distributions aléatoires de particules

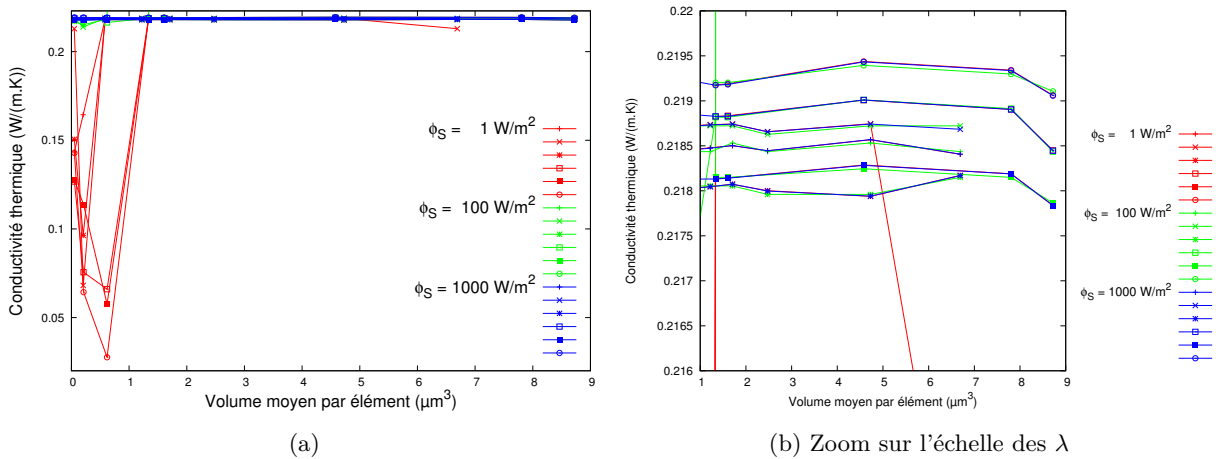


FIGURE 2.10 – Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la densité de flux appliquée et de la taille du maillage pour un V.E.R. de $50 \mu\text{m}$ de côté pour différentes distributions aléatoires de particules

thermique diverge pour un volume moyen par élément inférieur à $2 \mu\text{m}^3$, ce qui correspond, dans ce cas, à un maillage d'environ 70 000 éléments (Figures 2.13e et 2.13f). Nous remarquons également que pour une densité de flux de chaleur $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$, le coefficient de conductivité thermique diminue pour un volume moyen par élément supérieur à $5 \mu\text{m}^3$, alors que pour les densités de flux de chaleur $\phi_S = 100 \text{ W.m}^{-2}$ et $\phi_S = 1000 \text{ W.m}^{-2}$, le coefficient de conductivité thermique diminue pour un volume moyen par élément supérieur à $8 \mu\text{m}^3$. Dans ce cas, un volume moyen par élément de l'ordre de $5 \mu\text{m}^3$ correspond à un maillage d'environ 25 000 éléments (Figures 2.13c et 2.13d), alors qu'un volume moyen par élément de l'ordre de $8 \mu\text{m}^3$ correspond à un maillage d'environ 15 000 éléments (Figure 2.13a et 2.13b). La figure 2.10b, qui représente un zoom de la figure 2.10a, nous montre que le coefficient de conductivité thermique varie entre $0.218 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ et $0.2195 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour un volume moyen par élément compris entre 2 et $8 \mu\text{m}^3$, soit un maillage compris entre 15 000 et 70 000 éléments.

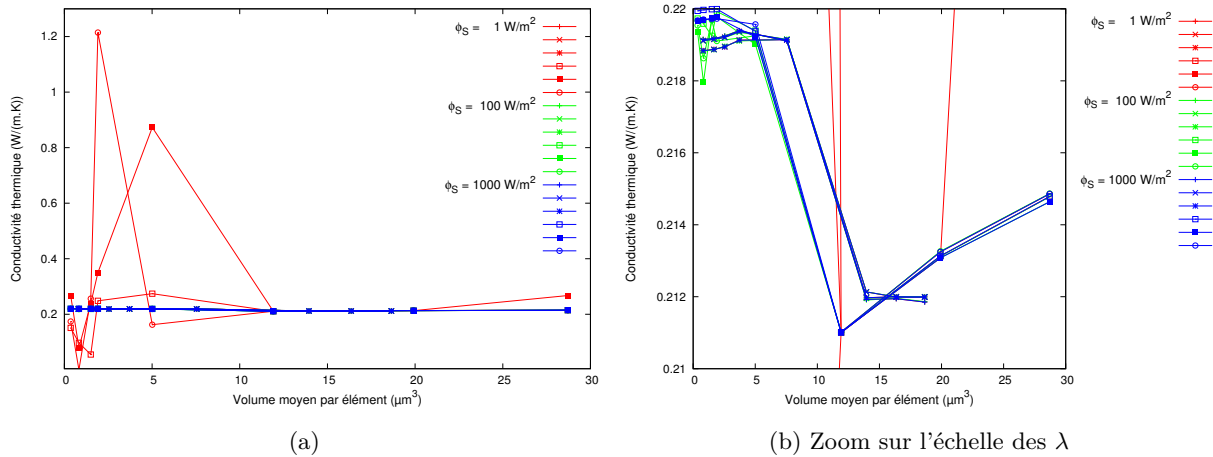


FIGURE 2.11 – Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la densité de flux appliquée et de la taille du maillage pour un V.E.R. de $100 \mu\text{m}$ de côté pour différentes distributions aléatoires de particules

Sur la figure 2.11a, pour un V.E.R. de $100 \mu\text{m}$ de côté nous constatons que dans le cas d'une densité de flux de chaleur $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$ le modèle ne converge vers aucune valeur cohérente quelle que soit la taille du maillage. Pour une densité de flux de chaleur $\phi_S = 100 \text{ W.m}^{-2}$ le coefficient de conductivité thermique diverge pour un volume moyen par élément inférieur à $2 \mu\text{m}^3$, ce qui correspond, dans ce cas, à un maillage d'environ 524 000 éléments (Figures 2.14c et 2.14d). Nous observons également que pour les densités de flux de chaleur $\phi_S = 100 \text{ W.m}^{-2}$ et $\phi_S = 1000 \text{ W.m}^{-2}$, le coefficient de conductivité thermique diminue pour un volume moyen par élément supérieur à $6 \mu\text{m}^3$. Dans ce cas, un volume moyen par élément de l'ordre de $6 \mu\text{m}^3$ correspond à un maillage d'environ 133 000 éléments (Figures 2.14a et 2.14b). La figure 2.11b, qui représente un zoom de la figure 2.11a, nous montre que le coefficient de conductivité thermique varie entre $0.218 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ et $0.2195 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour un volume moyen par élément compris entre 1 et $6 \mu\text{m}^3$, soit un maillage compris entre 133 000 et 524 000 éléments.

Ces différentes simulations nous permettent de faire une première optimisation des paramètres afin d'obtenir le meilleur compromis entre temps de calcul, taille du maillage et stabilisation des résultats.

Dans le cas d'un V.E.R. de $25 \mu\text{m}$ de côté nous constatons que :

- une valeur de la densité de flux de chaleur trop faible devant un maillage très affiné (ici $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$ pour un volume moyen par élément $V_{moy} \leq 1 \mu\text{m}^3$) amène une divergence des valeurs du coefficient de conductivité thermique. Le delta de température n'est pas assez important pour faire converger correctement la simulation.
- il y a une dispersion de l'ordre de 1% des valeurs du coefficient de conductivité thermique en fonction du volume moyen par élément quelle que soit la valeur de la densité de flux de chaleur.

Dans le cas d'un V.E.R. de $50 \mu\text{m}$ de côté nous remarquons que :

- comme dans le cas d'un V.E.R. de $25 \mu\text{m}$ de côté, une densité de flux de chaleur trop faible devant un maillage très affiné (ici $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$ pour un volume moyen par élément $V_{moy} \leq 2 \mu\text{m}^3$) amène une divergence des valeurs du coefficient de conductivité thermique.

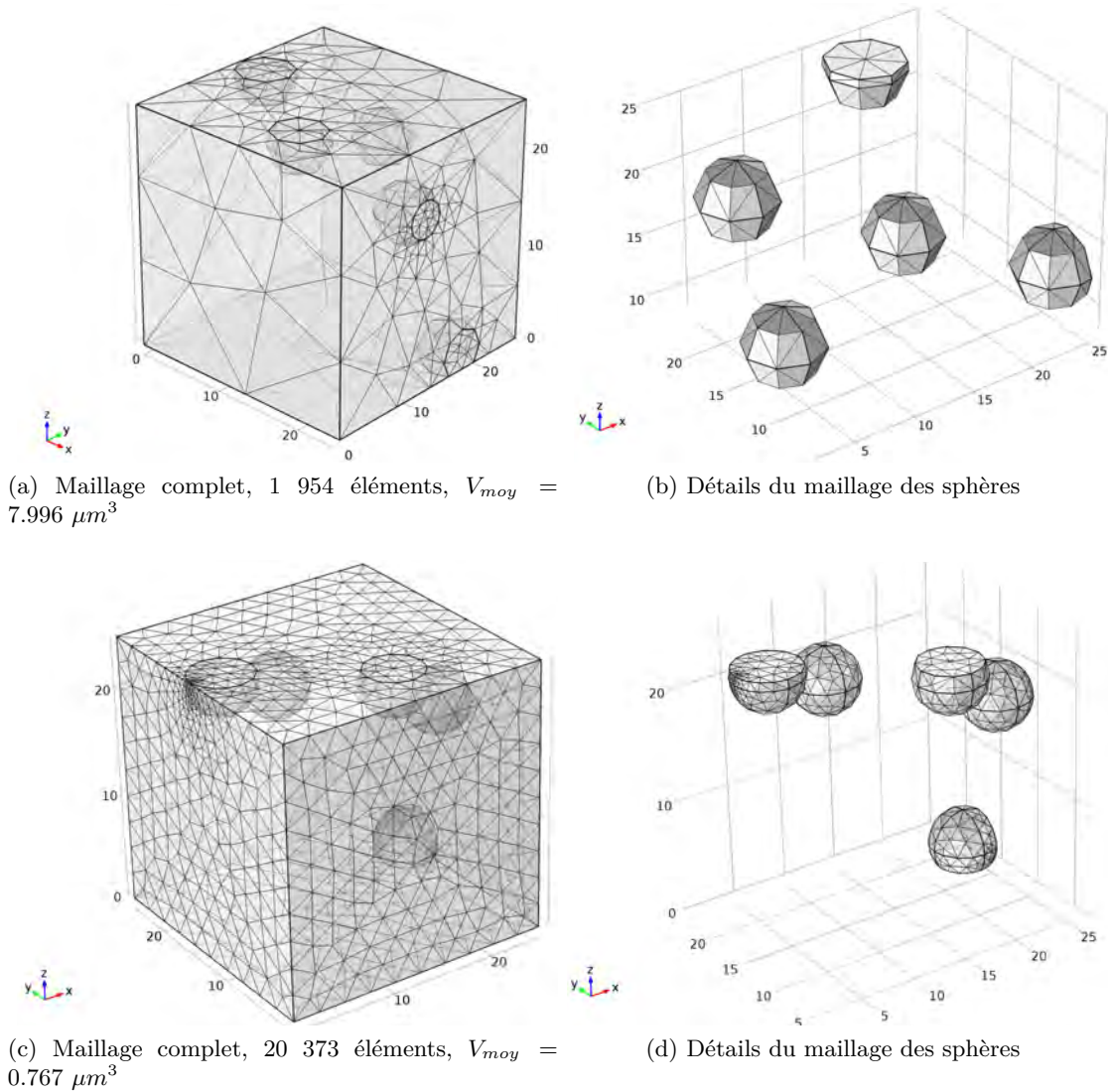
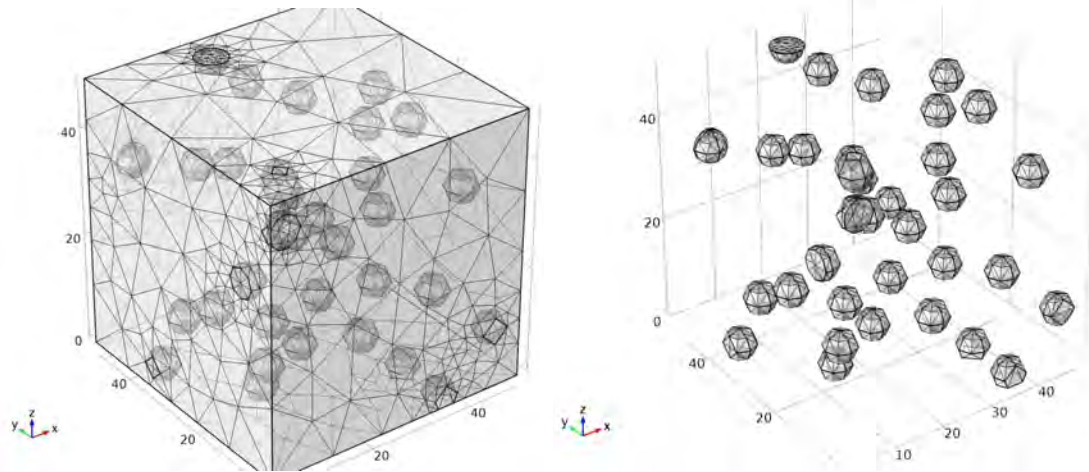


FIGURE 2.12 – Exemple de maillage pour un V.E.R. de $25 \mu\text{m}$ de côté

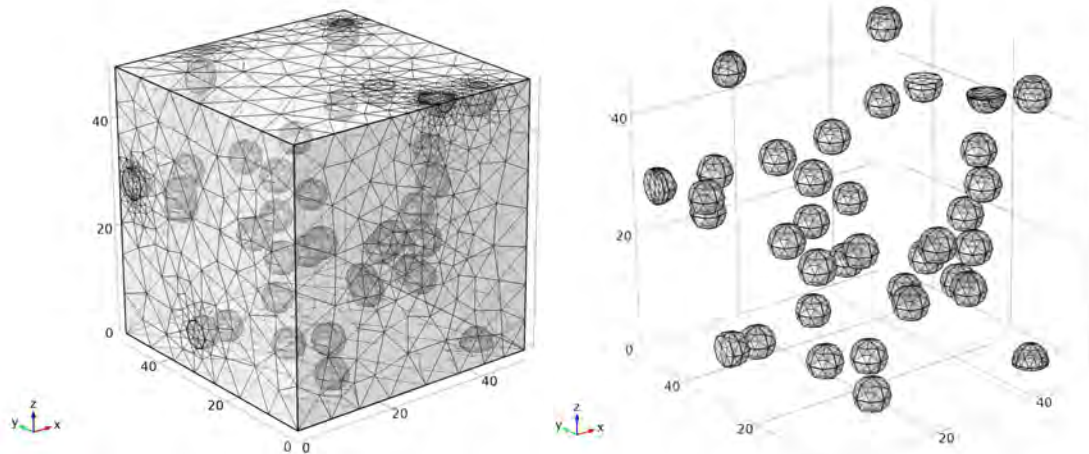
Le delta de température n'est pas assez important pour faire converger correctement la simulation.

- pour une valeur de densité de flux de chaleur suffisamment élevée (ici $\phi_S = 1\,000 \text{ W.m}^{-2}$) la dispersion des résultats est de l'ordre de 0.7% quel que soit le volume moyen par élément. Enfin, dans le cas d'un V.E.R. de $100 \mu\text{m}$ de côté nous remarquons que :
- une valeur de la densité de flux de chaleur trop faible (ici $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$) entraîne une divergence des valeurs du coefficient de conductivité thermique quelle que soit la qualité du maillage. Le delta de température n'est pas assez important pour faire converger correctement la simulation.
- pour des valeurs de densité de flux de chaleur plus élevées (ici $\phi_S = 100$ ou 1000 W.m^{-2}) il y a une très faible dispersion des valeurs du coefficient de conductivité thermique (de l'ordre de 0.7%) pour un volume moyen par élément inférieur à $6 \mu\text{m}^3$. Cependant pour un volume moyen par élément supérieur à $6 \mu\text{m}^3$, la valeur du coefficient de conductivité thermique diverge complètement.



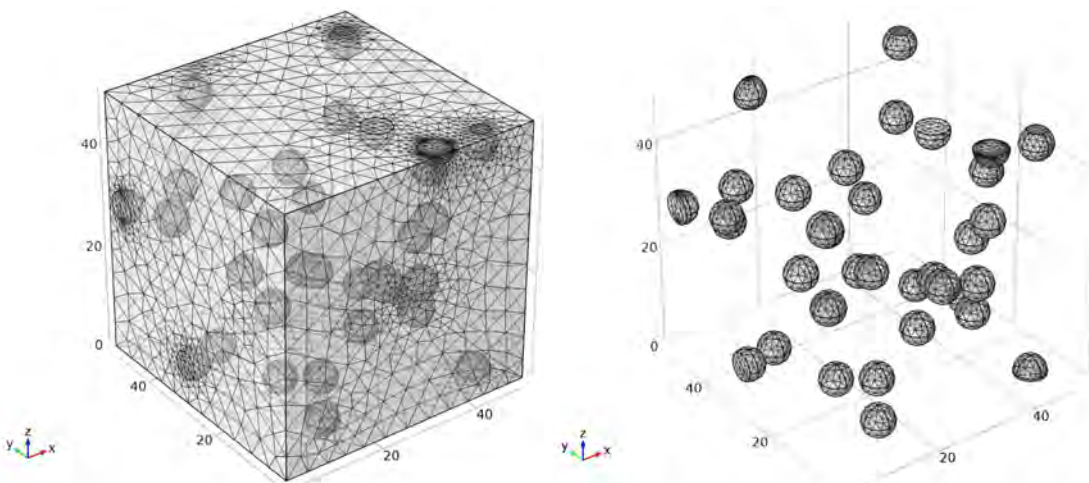
(a) Maillage complet, 14 333 éléments, $V_{moy} = 8.721 \mu m^3$

(b) Détails du maillage des sphères



(c) Maillage complet, 26 444 éléments, $V_{moy} = 4.727 \mu m^3$

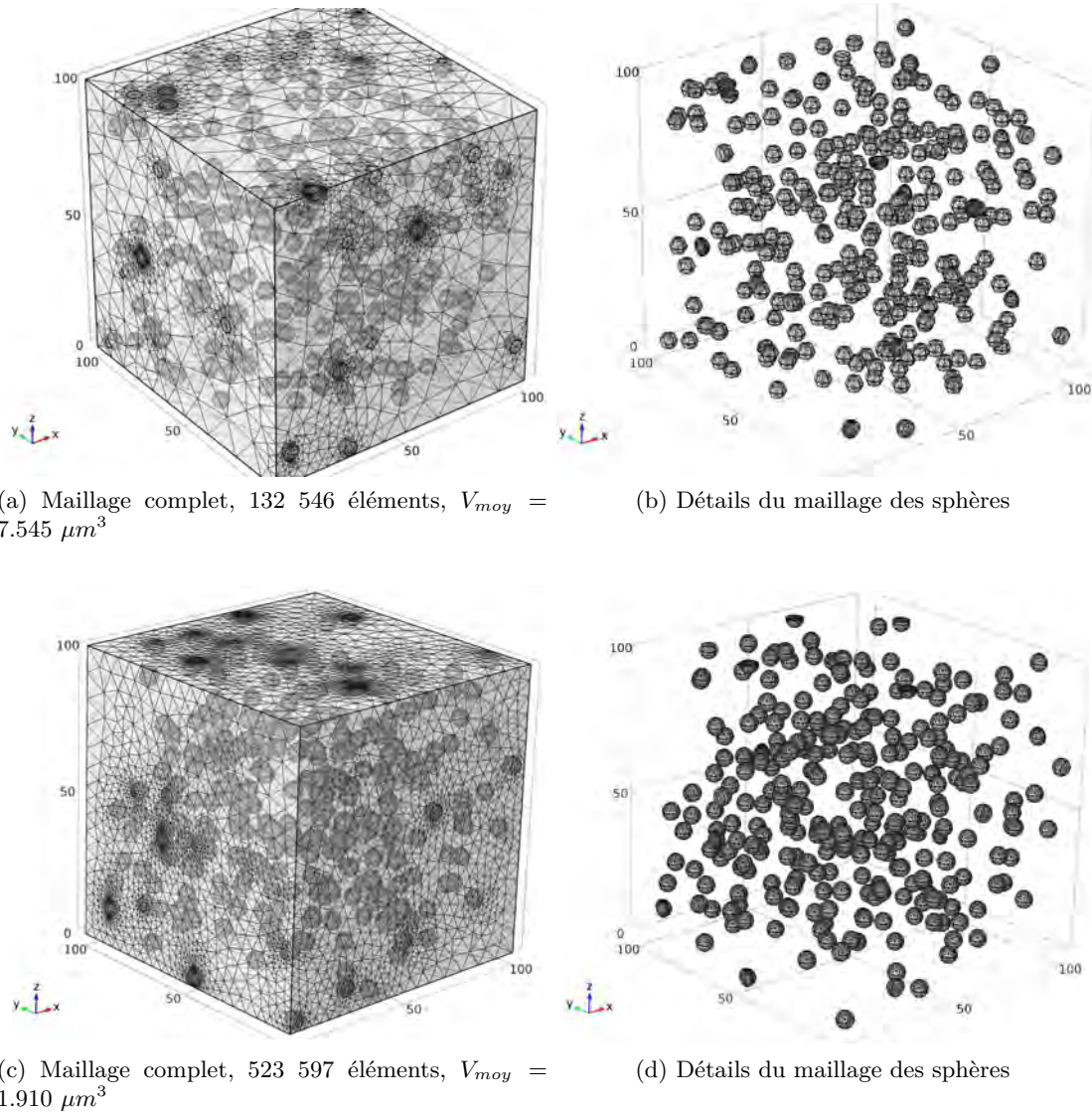
(d) Détails du maillage des sphères



(e) Maillage complet, 73 273 éléments, $V_{moy} = 1.706 \mu m^3$

(f) Détails du maillage des sphères

FIGURE 2.13 – Exemple de maillage pour un V.E.R. de $50 \mu m$ de côté

FIGURE 2.14 – Exemple de maillage pour un V.E.R. de $100 \mu m$ de côté

Il est trivial de dire que plus les modèles ont un nombre d'éléments élevé, plus les temps de calculs augmentent. Cependant si nous regardons le rapport taille des particules / taille du V.E.R. (r/L) nous constatons que plus ce rapport est élevé, plus il y a divergence des résultats dans le cas de maillages très fins, tandis que plus ce rapport est faible plus il y a divergence des résultats dans le cas de maillages grossiers.

Le meilleur compromis entre temps de calculs, taille de maillage et stabilisation des résultats est dans notre cas un V.E.R. de $50 \mu m$ de côté pour un rayon de particules moyen de $3 \mu m$, soit un rapport $r/L = 0.06$.

Nous avons également constaté que la taille du maillage et les divergences des résultats sont liées aux conditions aux limites du modèle. En effet, les résultats divergent totalement dans le cas d'un volume moyen par élément inférieur à $2 \mu m^3$ et d'une densité de flux de chaleur ϕ_S faible ($1 W.m^{-2}$). Ainsi, si nous choisissons une densité de flux de chaleur de $100 W.m^{-2}$

ou 1000 W.m^{-2} , la taille du maillage n'aura pas d'influence sur le coefficient de conductivité thermique.

Donc en résumé, afin d'optimiser les temps de calculs, la taille du maillage et pour garantir la stabilisation des résultats, il faut avoir :

- un rapport $r/L = 0.06$;
- une densité de flux de chaleur $\phi_S = 1000 \text{ W.m}^{-2}$;
- une taille de maillage telle que le volume moyen par élément soit compris entre $1 \mu\text{m}^3$ et $5 \mu\text{m}^3$.

2.2.2.3 Intérêt de la distribution aléatoire

Nous souhaitons ici mettre en évidence les différences sur le comportement thermique entre une distribution pseudo-aléatoire de particules et des arrangements périodiques connus mais qui ne sont pas réalisables expérimentalement. A titre d'exemple, le tableau 2.2 illustre l'influence de l'arrangement sur le coefficient de conductivité thermique pour une fraction volumique de particules $v_p = 3\%$. L représente la longueur du côté du V.E.R. telle que définie dans la figure 2.7. Afin de pouvoir comparer ces modèles à iso fractions volumiques, la taille des V.E.R. a été adaptée dans le cas des modèles pseudo cubique centré (Figure 2.15a) et pseudo cubique faces centrées (Figure 2.15b).

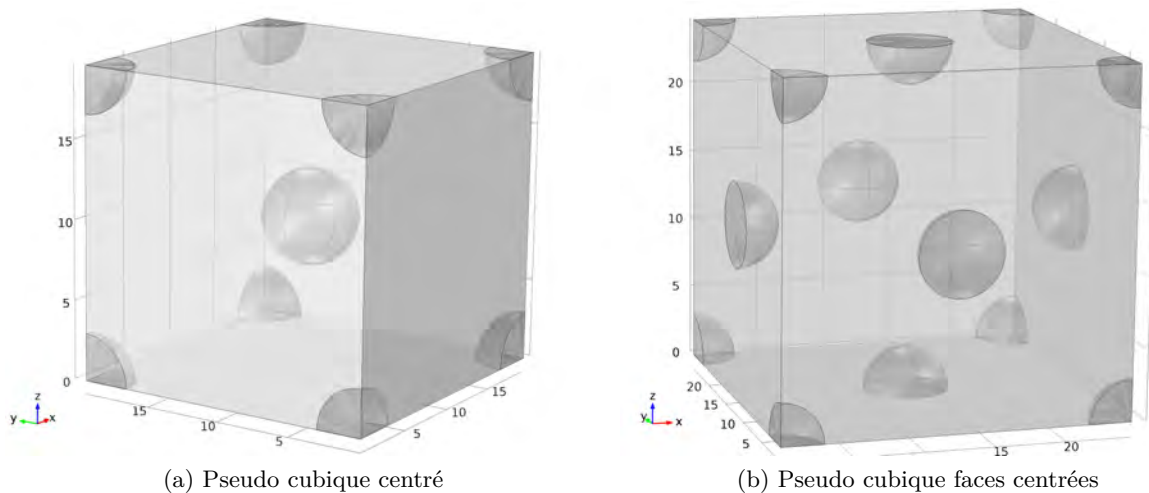


FIGURE 2.15 – Modèles avec arrangements périodiques

Nous avons ici choisi comme données d'entrée :

- coefficient de conductivité thermique des particules : $\lambda_p = 237 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$
- coefficient de conductivité thermique de la matrice : $\lambda_m = 0.2 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$
- température initiale : $T_0 = 0 \text{ K}$
- densité de flux de chaleur : $\phi_S = 1 \text{ W.m}^{-2}$

La figure 2.16a illustre le cas où toutes les particules seraient sur une seule face du V.E.R. tandis que la figure 2.16b montre le cas où les particules seraient distribuées de façon homogène entre les deux faces dans le sens du flux de chaleur.

Cas	Arrangement	v_p théorique (v_p modèle) (%)	λ_p ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	L (μm)
1	Aléatoire	3 (2.992)	0.226	50
2	Pseudo Cubique Centré	3 (3.002)	0.466	19.6
3	Pseudo Cubique Faces Centrées	3 (3.002)	0.232	24.7
4	Toutes les particules sur une face	3 (2.986)	0.215	50
5	Entre les faces soumises au flux de chaleur	3 (3.020)	0.446	50

TABLEAU 2.2 – Comparaison des valeurs du coefficient de conductivité thermique selon le type d'arrangement des particules avec une fraction volumique théorique de particules constante

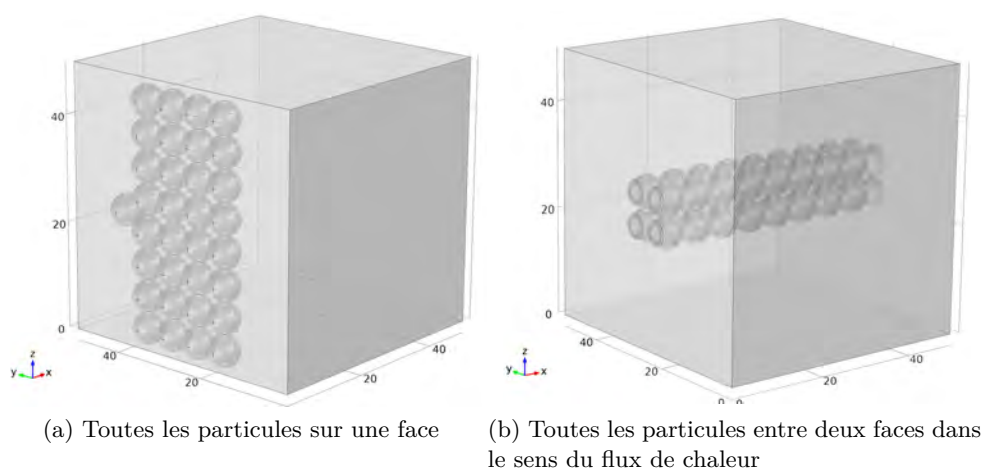


FIGURE 2.16 – Modèles particuliers de répartition de sphères

Le tableau 2.2 montre que dans les cas 2 et 5, le coefficient de conductivité thermique est deux fois plus élevé que pour les autres modèles. Cependant, le cas ne correspond à aucune réalité scientifique. Le cas 5 met en évidence que si toutes les particules sont jointes, elles créent un chemin privilégié pour le flux de chaleur. Toutefois il semble difficile d'arriver à organiser les particules de cette manière au niveau de la phase de production. Enfin, si nous comparons les cas 1, 3 et 4, le cas le plus défavorable est celui où toutes les particules se retrouvent sur une seule face du V.E.R. Ce résultat paraît logique. En effet, l'agglomération des particules sur une seule face ne permet pas de créer un chemin favorable entre les deux faces du V.E.R. soumises aux conditions aux limites. Le cas le plus favorable est le cas d'une répartition pseudo-cubique faces centrées. Cependant, comme pour le cas 2 une telle répartition n'est pas réaliste. Il ne reste donc que le cas de la répartition aléatoire des particules dans le V.E.R. Avec une fraction volumique de particules de 3% nous obtenons ainsi une augmentation de 13% de la valeur du coefficient

de conductivité thermique par rapport à la matrice non chargée. Cela nous conforte dans la démarche que nous avons choisi, à savoir d'ajouter des particules conductrices afin d'améliorer les propriétés thermiques de cette dernière.

2.2.2.4 Influence de la taille des particules

Comme nous l'avons expliqué précédemment, nous avons décidé de ne prendre en compte qu'un rayon moyen de particules dans nos simulations. Cependant, cela n'est pas représentatif de la réalité. Nous avons donc voulu voir l'influence de la taille des particules sur le coefficient de conductivité thermique. Pour cela nous avons fait varier la valeur du rayon moyen considéré dans nos modèles.

Ainsi, nous avons simulé différentes répartitions aléatoires de particules sphériques de rayon moyen 1, 3, 6 et 12 μm . Afin de conserver le rapport de taille que nous avons défini dans la section 2.2.2.2 nous avons fait évoluer la taille du V.E.R. en fonction du rayon moyen des particules. Les différentes valeurs sont répertoriées dans le tableau 2.3.

Rayon moyen des particules (μm)	Taille du V.E.R. (μm)
1	16.7
3	50
6	100
12	200

TABLEAU 2.3 – Taille du V.E.R. L en fonction du rayon moyen des particules r

Nous nous sommes, ici, concentré sur un modèle ayant une fraction volumique, $v_p = 3\%$. De plus, nous avons imposé comme conditions aux limites, une température initiale $T_0 = 0K$ et une densité de flux de chaleur $\phi_S = 1000 W.m^{-2}$. La figure 2.17 montre l'évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction du rayon moyen des particules. Nous observons ainsi que la valeur du rayon moyen des particules n'a pas vraiment d'influence sur le coefficient de conductivité thermique de notre modèle.

2.2.2.5 Influence de la fraction volumique de particules

Afin d'étudier l'influence de la fraction volumique de particules sur le coefficient de conductivité thermique d'une matrice dopée nous avons appliqué les conditions aux limites suivantes :

- un V.E.R. de 50 μm de côté
- un rayon moyen de particules $r = 3 \mu m$
- coefficient de conductivité thermique de la matrice $\lambda_m = 0.20 W.m^{-1}.K^{-1}$
- coefficient de conductivité thermique des particules $\lambda_p = 237 W.m^{-1}.K^{-1}$

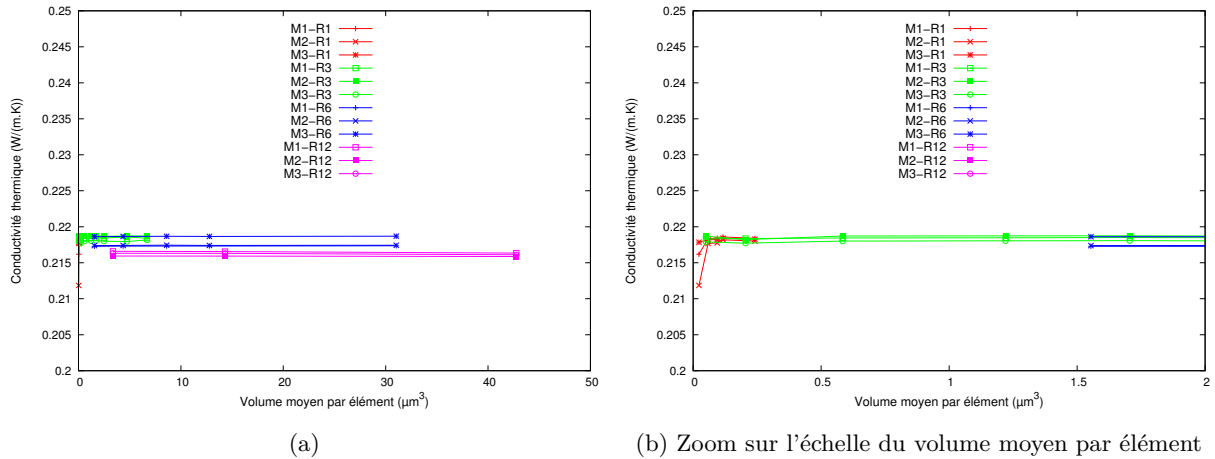


FIGURE 2.17 – Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction du rayon moyen des particules R pour différentes répartitions aléatoires M_i

- une température initiale $T_0 = 0 \text{ K}$
- une densité de flux de chaleur $\phi_S = 1000 \text{ W.m}^{-2}$
- un maillage ayant un volume moyen par éléments aux alentours de $1 \mu\text{m}^3$.

Chaque valeur de coefficient de conductivité thermique est la moyenne de six simulations effectuées sur six générations différentes de dispersion de particules.

La figure 2.18 montre l'évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la fraction volumique de particules. Nous constatons que le coefficient de conductivité thermique augmente avec la fraction volumique de particules conductrices comme nous pouvions nous y attendre. Nous remarquons ainsi que nous avons une plus grande dispersion de nos résultats pour les modèles ayant une fraction volumique de particules de 5%. Nous pouvons cependant noter que les autres dispersions sont similaires quelle que soit la fraction volumique de particules. Le modèle développé montre une bonne répétabilité.

Cependant, nous observons une limitation numérique du modèle. En effet, au delà d'une fraction volumique de 20% le maillage du modèle devient impossible. Cela est dû au fait que l'écart entre les sphères est trop faible pour que le logiciel arrive à bien différencier la partie *matrice* de la partie *particules*. Cette limitation n'est cependant pas un problème sur ce projet étant donné que nous souhaitons coupler cette matrice dopée à des renforts fibres longues. La fraction volumique de particules ne dépassera donc pas les 20%. Nous pensons qu'au-delà de 20% et peut-être même pour des fractions volumiques plus faibles, il risque d'y avoir des difficultés pour infiltrer la résine chargée de particules au travers du réseau de fibres du tissu sec.

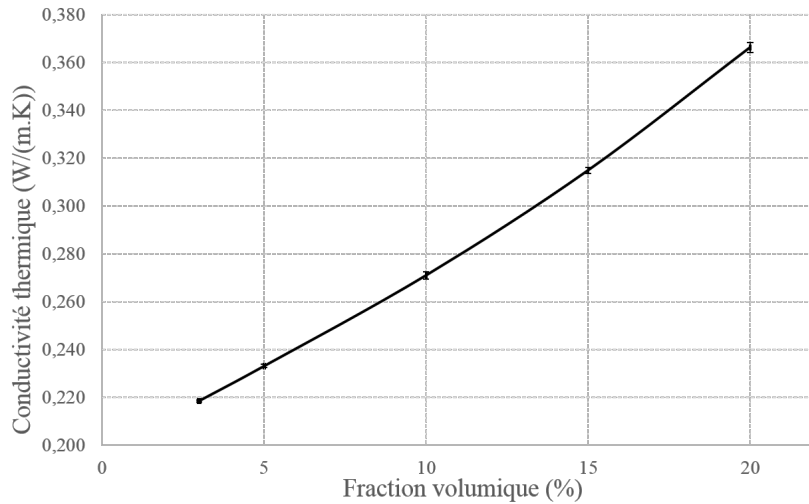


FIGURE 2.18 – Évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la fraction volumique de particules. Matrice époxy ($\lambda = 0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) et particules d'aluminium ($\lambda = 237 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)

2.2.3 Comparaison entre les modèles numériques et analytiques

Nous avons souhaité comparer notre modèle numérique avec différents modèles analytiques présentés dans le chapitre 1 à savoir :

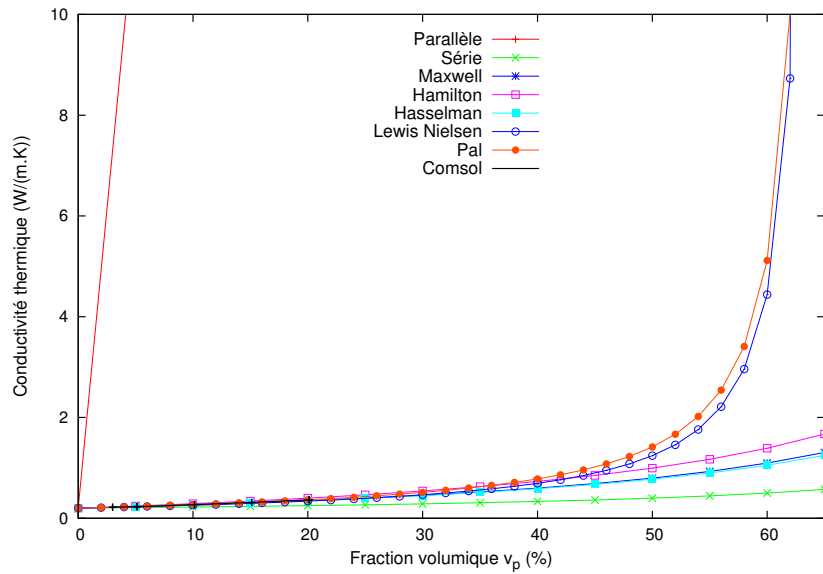
- le modèle de Maxwell (section 1.1, p. 8)
- le modèle des couches en parallèle (section 1.1.1.1, p. 9)
- le modèle des couches en série (section 1.1.1.1, p. 8)
- le modèle de Hamilton-Crosser (section 1.1.1.2, p. 12)
- le modèle de Lewis-Nielsen (section 1.1.1.3, p. 15)
- le modèle de Pal (section 1.1.1.3, p. 15)
- le modèle de Hasselman et Johnson (section 1.1.2.2, p. 21)

Afin de comparer les différentes valeurs analytiques du coefficient de conductivité thermique du composite en fonction de la fraction volumique de particules, v_p , nous avons posé comme conditions aux limites les mêmes valeurs que pour le modèle numérique, à savoir :

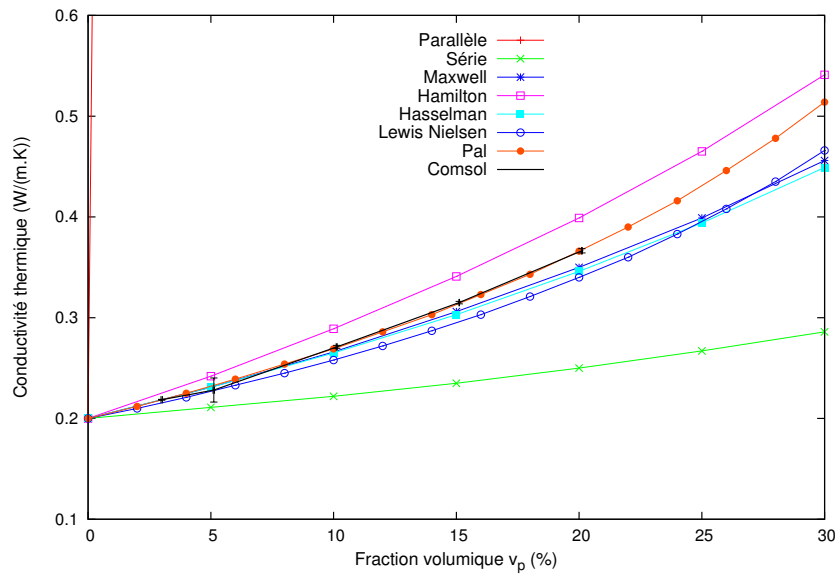
- le coefficient de conductivité thermique de la matrice : $\lambda_m = 0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ (valeur généralement rencontrée dans la cas de système époxy)
- le coefficient de conductivité thermique des particules : $\lambda_p = 237 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ (cas de particules d'aluminium)
- le rayon moyen des particules : $r = 3 \mu\text{m}$

La fraction volumique de particules varie entre 0% et 65%. Pour le modèle de Hasselman, la conductance thermique limite, h_c , est fonction de la matrice, des particules et de la géométrie de l'interface. Il est difficile de définir une valeur exacte comme nous l'avons expliqué précédemment (section 1.1.2.2, p. 21). Nous nous sommes donc appuyés sur la référence [62] et avons défini $h_c = 1.10^{-7} \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$.

La figure 2.19 montre l'évolution du coefficient de conductivité thermique en fonction de la fraction volumique de particules pour les différents modèles analytiques présentés précédemment et pour le modèle numérique développé sous COMSOL MULTIPHYSICS.



(a)



(b) Zoom sur l'échelle des fractions volumiques et des λ

FIGURE 2.19 – Comparaison entre les modèles analytiques et numérique

Nous observons ainsi que les modèles des couches en série et en parallèle sous-estiment ou sur-estiment complètement notre modèle numérique. Ces modèles permettent néanmoins de définir les bornes supérieure et inférieure que peut atteindre le coefficient de conductivité thermique.

Nous constatons également que jusqu'à une fraction volumique $v_p = 10\%$, les modèles de Maxwell, Hasselman et Johnson, Lewis-Nielsen, Pal et notre modèle numérique montrent la même évolution.

A partir d'une fraction volumique $v_p = 15\%$, les modèles de Maxwell, Hasselman et Johnson et Lewis-Nielsen sous estiment notre modèle numérique. La divergence étant de plus en plus importante au fur et à mesure que la fraction volumique augmente.

Le modèle de Hamilton-Crosser quant à lui surestime notre modèle numérique. Enfin le modèle de Pal, qui nous le rappelons est dérivé du modèle de Lewis-Nielsen, suit notre modèle jusqu'à une fraction volumique $v_p = 15\%$. La principale difficulté dans l'utilisation de modèles tels que ceux de Lewis-Nielsen ou Pal, est qu'il n'est pas clairement explicité comment les paramètres clés de l'équation sont définis. En effet, dans le cas de ces modèles, deux paramètres sont difficiles à appréhender : la fraction volumique maximum de particules ϕ_m et le paramètre A . Il est difficile de pouvoir mettre ces paramètres en parallèle avec une réalité matériau.

Nous pouvons également souligner que malgré le fait que le modèle de Hamilton sur-estime les résultats numériques, son utilisation reste intéressante. En effet, la plupart des modèles ont été développés autour d'un modèle de particules parfaitement sphérique. Or, comme nous le verrons par la suite, les particules dopantes ne sont pas toutes de forme sphérique. Le modèle de Hamilton étant développé sur la notion de sphéricité de la particule, il est beaucoup plus modulable en fonction du type de particules rencontrées. C'est pour ces raisons que nous avons choisi de nous baser sur le modèle de Hamilton comme modèle analytique de référence.

2.3 Modèle de distribution aléatoire d'ellipsoïdes

L'hypothèse des particules parfaitement sphériques ne permet pas d'envelopper au plus près toutes les formes de particules.

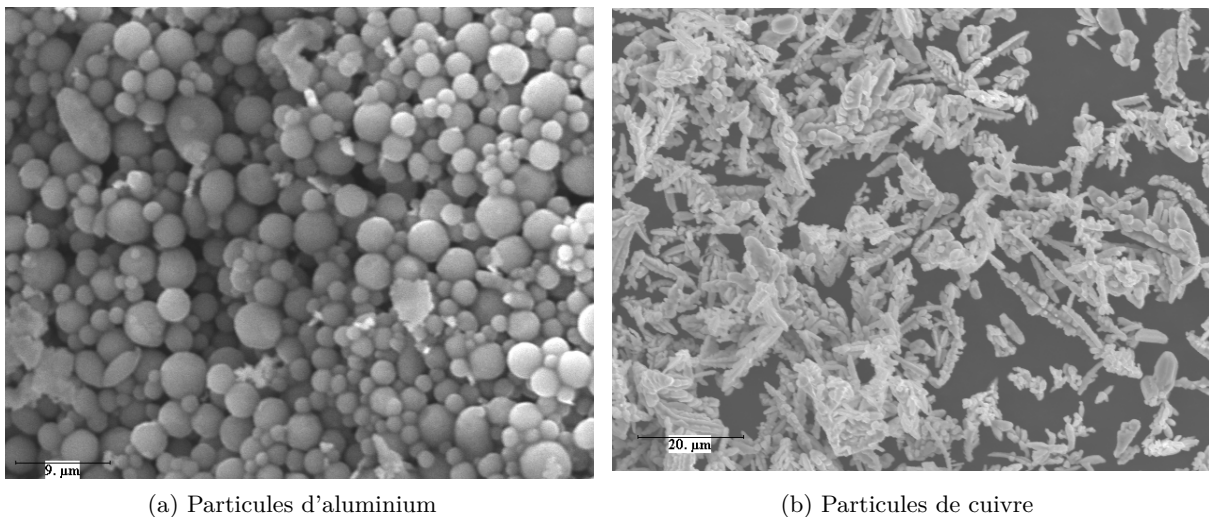


FIGURE 2.20 – Exemple de particules dopantes

En effet, comme le montre la figure 2.20 avec des particules d'aluminium sphériques et des particules de cuivre dendritiques (aiguilles), nous comprenons tout l'intérêt de proposer un outil de dispersion aléatoire de particules ellipsoïdales, qui permettrait, par exemple, d'envelopper au mieux des particules à facteur de forme élevé. Nous avons développé un nouvel algorithme

permettant de disperser aléatoirement des particules de forme ellipsoïdale qui, comme dans le cas des particules sphériques ne se superposent pas entre elles, il n'y a donc aucune interférence des volumes. La définition de ce nouveau paramètre de non collision est plus complexe à définir que celui des particules sphériques. En effet, en considérant que, contrairement aux sphères qui sont définies par une seule dimension (leur rayon r), la définition des ellipsoïdes fait intervenir trois dimensions (les demi-axes a , b et c), le paramétrage à mettre en place pour prévenir l'interférence est donc considérablement plus complexe. Ainsi, nous avons décidé dans un premier temps de développer le modèle en 2D afin de simplifier la programmation. Nous passerons ensuite à un modèle 3D en étendant la méthode.

2.3.1 Modèle 2D

Nous avons défini un nouvel algorithme permettant une dispersion aléatoire d'une certaine fraction volumique de particules elliptiques, v_p (Figure 2.21), dans un V.E.R. carré de côté L . Dans un souci de simplification dans la génération géométrique du V.E.R., nous avons décidé de ne pas laisser les ellipses sortir du V.E.R. contrairement au modèle de dispersion de sphères. En effet, le fait de disperser des ellipses complexifie d'autant plus le problème que nous devons prendre en compte le tirage aléatoire de l'angle d'orientation des ellipses, α . Ce nouveau paramètre rend la détermination du paramètre de non collision plus complexe. En effet, il ne s'agit plus ici de vérifier la distance entre deux points par le simple calcul de la norme d'un vecteur (cf. section 2.2.1, p. 54).

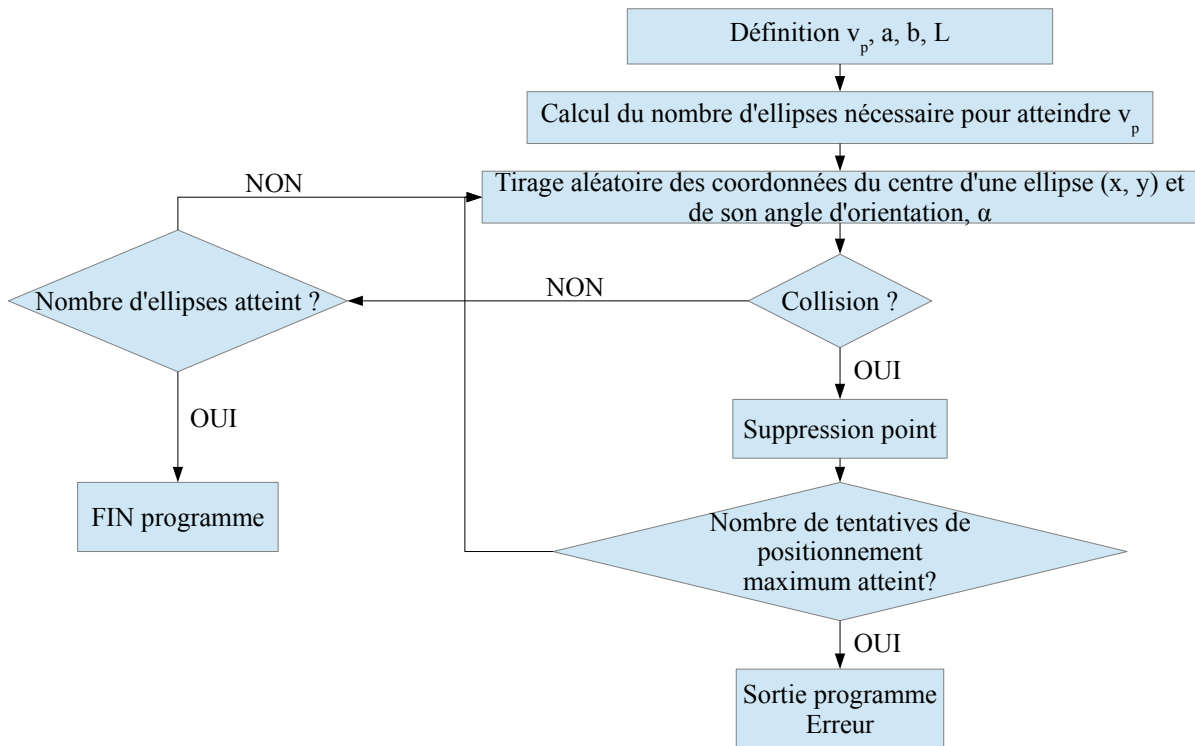


FIGURE 2.21 – Algorithme de génération de particules elliptiques dans un V.E.R. avec des positions aléatoires

Le tirage aléatoire des coordonnées du centre et de l'angle d'orientation d'une ellipse s'appuie sur la fonction **rand** d'OCTAVE, qui est la même que celle que nous trouvons sous MATLAB. La fonction **rand** génère une série de nombres aléatoires suivant une loi uniforme sur l'intervalle (0,1). Ici, nous souhaitons que la dispersion d'ellipses, de demi grand axe b et de demi petit axe a , se fasse à l'intérieur strictement d'un V.E.R. carré de côté L . Les centres des ellipses sont donc répartis dans un carré de côté $(L - 2b)$ et l'angle d'orientation des ellipses est compris entre 0 et 2π . Nous définissons ainsi une matrice regroupant les coordonnées des centres des ellipses et une matrice regroupant les angles d'orientation des ellipses.

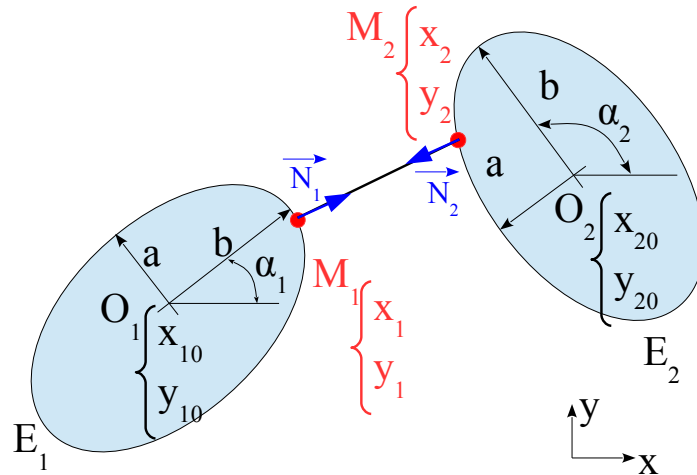


FIGURE 2.22 – Définition de la géométrie paramétrage des particules elliptiques

La figure 2.22 montre la définition de la géométrie des ellipses. Les coordonnées des centres des ellipses, O_1 et O_2 sont tirées aléatoirement ainsi que leurs orientations, α_1 et α_2 . Afin de vérifier la non collision des ellipses, pour chaque couple d'ellipses nous recherchons les points M_1 et M_2 . Ces points sont définis de telle manière qu'ils répondent aux hypothèses suivantes :

- Le point M_1 , de coordonnées (x_1, y_1) doit appartenir à l'ellipse E_1 mais ni sur ni dans l'ellipse E_2 ;
- Le point M_2 , de coordonnées (x_2, y_2) doit appartenir à l'ellipse E_2 mais ni sur ni dans E_1 ;
- La normale à l'ellipse au point M_1 , \vec{N}_1 et la normale à l'ellipse au point M_2 , \vec{N}_2 doivent être colinéaires.

Dans un premier temps, nous nous plaçons dans un repère local (X, Y) et nous définissons l'équation(2.5) qui est l'équation cartésienne d'une ellipse de demi grand axe b et de demi petit axe a .

$$\left(\frac{X}{b}\right)^2 + \left(\frac{Y}{a}\right)^2 = 1 \quad (2.5)$$

Nous nous plaçons ensuite dans un repère global (x, y) (Figure 2.22) par rotation d'un angle α . Nous pouvons ainsi exprimer les hypothèses précédentes par le système d'équation(2.6).

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{(\cos \alpha_1 (x_1 - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_1 - y_{10}))^2}{a^2} + \frac{(-\sin \alpha_1 (x_1 - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_1 - y_{10}))^2}{b^2} - 1 = 0 \\ \frac{(\cos \alpha_2 (x_2 - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_2 - y_{20}))^2}{a^2} + \frac{(-\sin \alpha_2 (x_2 - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_2 - y_{20}))^2}{b^2} - 1 = 0 \\ \vec{N}_1 \wedge \vec{N}_2 = \vec{0} \\ \vec{N}_1 \wedge \overrightarrow{M_1 M_2} = \vec{0} \end{array} \right. \quad (2.6)$$

avec x_{10} , y_{10} , x_{20} et y_{20} les coordonnées des centres des ellipses E_1 et E_2 respectivement.

Les normales aux ellipses aux points M_1 et M_2 , sont définies par leurs projetés sur les axes x et y (N_{xi} et N_{yi}) tels que décrits par les équations(2.7) et(2.8) (i étant égal à 1 ou 2).

$$N_{xi} = 2 [\cos \alpha_i (x_i - x_{i0}) + \sin \alpha_i (y_i - y_{i0})] \cos \alpha_i - \frac{2}{9} [-\sin \alpha_i (x_i - x_{i0}) + \cos \alpha_i (y_i - y_{i0})] \sin \alpha_i \quad (2.7)$$

$$N_{yi} = 2 [\cos \alpha_i (x_i - x_{i0}) + \cos \alpha_i (y_i - y_{i0})] \cos \alpha_i + \frac{2}{9} [-\sin \alpha_i (x_i - x_{i0}) + \cos \alpha_i (y_i - y_{i0})] \cos \alpha_i \quad (2.8)$$

Pour éviter l'interpénétration des deux ellipses, nous imposons une condition supplémentaire basée sur la distance entre M_1 et M_2 . En effet, nous supposons que $x_1 < x_2$ alors la mesure algébrique $\overline{M_1 M_2}$ doit être positive.

Nous cherchons à trouver les coordonnées des points $M_1 (x_1, y_1)$ et $M_2 (x_2, y_2)$. Pour cela nous regroupons les quatre inconnues dans un vecteur $X = (x_1, y_1, x_2, y_2)$. Ces inconnues vérifient le système d'équations(2.6) non linéaire qui peut s'écrire sous la forme $F(X) = 0$ et dont la résolution demande une résolution particulière. Pour se faire nous avons choisi de mettre en œuvre la méthode de Newton Raphson. Celle-ci consiste à construire une suite $X_k = (x_{1k}, y_{1k}, x_{2k}, y_{2k})$ telle que X_k tend vers X . Le vecteur X_k est alors construit de façon itérative en partant de X_0 ci-dessous puis en utilisant la formule (2.9) où J est la matrice Jacobienne associée à F (voir son expression en suivant et en annexe B).

$$J(X_k) (X_{k+1} - X_k) = -F(X_k) \quad (2.9)$$

Le système d'équation(2.6) s'écrit sous la forme $F(X_k) = 0$ avec :

$$F_1(X_k) = \left(2 \cos \alpha_1 \frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} - 2 \sin \alpha_1 \right.$$

$$\begin{aligned} & \frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} (y_{2k} - y_{1k}) \\ & - \left(2 \sin \alpha_1 \frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} \right. \\ & \left. + 2 \cos \alpha_1 \frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right) (x_{2k} - x_{1k}) = 0 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} F_2(X_k) = & \left(2 \cos \alpha_1 \frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} - 2 \sin \alpha_1 \right. \\ & \left. \frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right) \left(2 \sin \alpha_2 \frac{\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{a^2} \right. \\ + 2 \cos \alpha_2 & \left. \frac{-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right) - \left(2 \sin \alpha_1 \frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} \right. \\ + 2 \cos \alpha_1 & \left. \frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right) \left(2 \cos \alpha_2 \frac{\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{a^2} \right. \\ & \left. - 2 \sin \alpha_2 \frac{-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right) = 0 \end{aligned}$$

$$F_3(X_k) = \frac{[\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]^2}{a^2} + \frac{[-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]^2}{b^2} - 1 = 0$$

$$F_4(X_k) = \frac{[\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]^2}{a^2} + \frac{[-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]^2}{b^2} - 1 = 0$$

Nous cherchons à déterminer X_{k+1} qui représente les coordonnées des points M_1 et M_2 .

Le point initial X_0 de notre méthode est choisi comme étant le milieu du vecteur $\overrightarrow{O_1O_2}$ et s'exprime par :

$$X_0 = \begin{bmatrix} \frac{x_{10} + x_{20}}{2} \\ \frac{y_{10} + y_{20}}{2} \\ \frac{x_{10} + x_{20}}{2} \\ \frac{y_{10} + y_{20}}{2} \end{bmatrix} \quad (2.10)$$

À chaque itération nous vérifions le critère de convergence, défini comme étant la différence entre X_k et X_{k+1} . Quand ce critère devient inférieur à l'erreur minimum que nous acceptons, la solution a convergé.

Un premier développement sous JAVA a été effectué. Nous avons constaté que la compilation de ce programme dans certains cas entraîne la superposition d'ellipses entre elles. Il y a donc interférence (Figure 2.23).



FIGURE 2.23 – Exemple d'interférence entre ellipses - Modèle 2D

Le problème vient du langage de programmation et de la méthode de détermination. En effet, la méthode de Newton est une méthode itérative et le langage JAVA n'ayant pas été développé pour du calcul scientifique, la propagation des erreurs de calculs dans le principe de convergence peut expliquer les interférences.

Pour remédier à cela, nous avons développé à nouveau l'algorithme présenté précédemment (Figure 2.2) sous OCTAVE (équivalent MATLAB). L'annexe C décrit ce programme. Ce programme effectue donc les calculs de convergence et édite un tableau répertoriant les coordonnées des centres des ellipses et leur orientation. Ce tableau est ensuite utilisé dans un programme JAVA pour définir les coordonnées des centres des ellipses puis générer la géométrie du V.E.R. La figure 2.24 montre différentes générations de V.E.R. pour différentes fractions volumiques de particules et met en évidence que le problème d'accumulation d'erreur a disparu car il n'y a plus de chevauchement d'ellipses.

Nous pouvons conclure que l'utilisation de JAVA dans COMSOL doit se limiter à une application des commandes développées par COMSOL pour créer les géométries ou définir les conditions aux limites. Par contre, pour tout calcul scientifique complexe il vaut mieux utiliser un logiciel intermédiaire dédié tel que MATLAB. Dans ce sens, COMSOL a développé un partenariat avec MATLAB afin de pouvoir, par l'intermédiaire d'un module spécifique, utiliser les fonctions et la puissance de calcul de MATLAB dans COMSOL. Malheureusement, ce partenariat ne fonctionne qu'avec MATLAB et non avec des logiciels équivalents tels que OCTAVE. L'optimisation de ce modèle nécessite donc forcément une étape de développement sous OCTAVE.

Comme nous l'avons montré, la modélisation 2D fonctionne jusqu'à des fractions volumiques de particules, $v_p = 20\%$. Nous n'irons pas au-delà d'une fraction volumique de particules de

20% car, comme nous l'avons déjà expliqué pour le modèle de dispersion de sphères, la matrice dopée n'est qu'une partie du matériau composite. Elle doit, en effet, venir imprégner un renfort contenant entre 45 et 50% de fibres. Une fraction volumique de particules plus importante risque d'empêcher la bonne imprégnation du renfort.

Le modèle 2D fonctionne bien, nous nous sommes donc appuyés sur la même démarche pour développer le modèle de génération aléatoire de dispersion d'ellipsoïdes dans un V.E.R. cubique 3D.

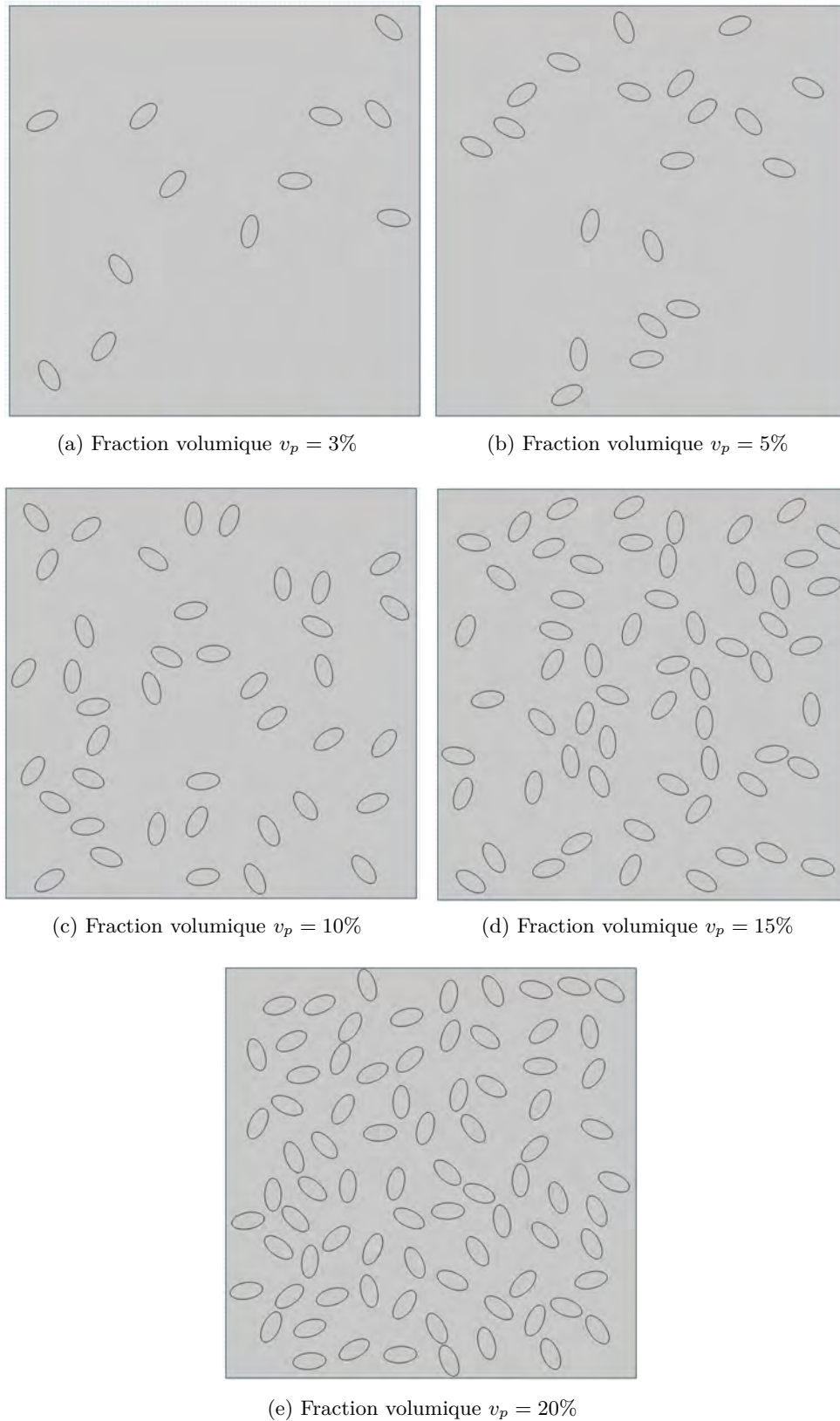


FIGURE 2.24 – Exemple de distribution aléatoire de particules elliptiques dans un V.E.R. 2D pour différentes fractions volumiques

2.3.2 Modèle 3D

Le développement du modèle 3D est basé sur le même algorithme que le modèle 2D. Le problème se complexifie un peu plus avec l'ajout de la troisième direction. En effet, nous nous retrouvons avec cinq paramètres définis aléatoirement :

- les coordonnées du centre de l'ellipsoïde i (x_i, y_i, z_i) de dimensions (a, b, c) avec $a \geq b \geq c \geq 1$;
- et les rotations de l'ellipsoïde : α_i , la rotation autour de z et β_i , la rotation autour de y pour l'ellipsoïde i .

De la même manière que pour le modèle 2D, en nous appuyant sur la figure 2.25, nous définissons le système d'équations(2.11).

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \frac{[\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_1 - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_1 - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})]^2}{a^2} \\
 + \frac{[\sin \alpha_1 (x_1 - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_1 - y_{10})]^2}{b^2} \\
 + \frac{[\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_1 - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_1 - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})]^2}{c^2} - 1 = 0 \\
 \frac{[\cos \beta_2 \cos \alpha_2 (x_2 - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2 (y_2 - y_{20}) - \sin \beta_2 (z_2 - z_{20})]^2}{a^2} \\
 + \frac{[\sin \alpha_2 (x_2 - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_2 - y_{20})]^2}{b^2} \\
 + \frac{[\sin \beta_2 \cos \alpha_2 (x_2 - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2 (y_2 - y_{20}) + \cos \beta_2 (z_2 - z_{20})]^2}{c^2} - 1 = 0 \\
 \vec{N}_1 \wedge \vec{N}_2 = \vec{0} \\
 \vec{N}_1 \wedge \vec{M}_1 \vec{M}_2 = \vec{0}
 \end{array} \right. \quad (2.11)$$

Le système d'équation(2.11) s'écrit $F(X_k) = 0$ avec le point initial X_0 de notre méthode, choisi comme étant le milieu du vecteur $\vec{O_1 O_2}$ et s'exprime par :

$$X_0 = \begin{bmatrix} \frac{x_{10} + x_{20}}{2} \\ \frac{y_{10} + y_{20}}{2} \\ \frac{z_{10} + z_{20}}{2} \\ \frac{x_{10} + x_{20}}{2} \\ \frac{y_{10} + y_{20}}{2} \\ \frac{z_{10} + z_{20}}{2} \end{bmatrix} \quad (2.12)$$

et $F(X_k)$ défini en suivant et en annexe D,

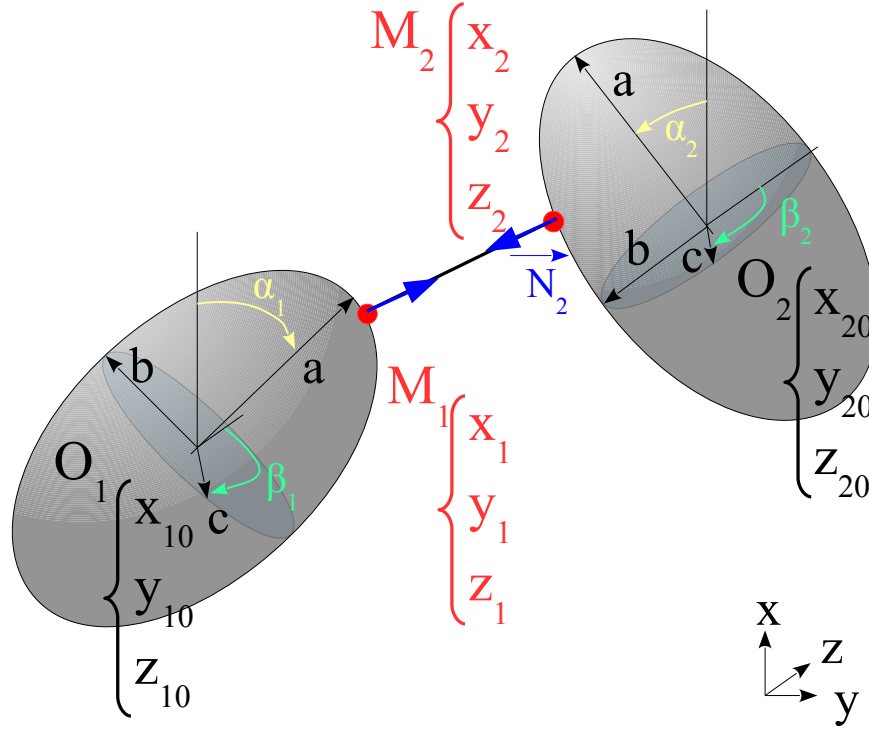


FIGURE 2.25 – Définition de la géométrie et du paramétrage des particules ellipsoïdales

$$F_1(X_k) = F_{11} + F_{12} = 0$$

$$F_{11} = \left[2 \cos \beta_1 \cos \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\ \left. + 2 \sin \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\ \left. + 2 \sin \beta_1 \cos \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] (y_{2k} - y_{1k})$$

$$F_{12} = - \left[-2 \cos \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\ \left. + 2 \cos \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\ \left. - 2 \sin \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] (x_{2k} - x_{1k})$$

$$F_2(X_k) = F_{21} + F_{22} = 0$$

$$\begin{aligned}
 F_{21} = & - \left[-2 \cos \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \sin \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \sin \beta_1 \cos \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] \\
 & \left[-2 \cos \beta_2 \sin \alpha_2 \frac{\cos \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2 (z_2 - z_{20})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \cos \alpha_2 \frac{\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right. \\
 & \quad \left. - 2 \sin \beta_2 \sin \alpha_2 \frac{\sin \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2 (z_2 - z_{20})}{c^2} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 F_{22} = & \left[2 \cos \beta_1 \cos \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \cos \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\
 & \quad \left. - 2 \sin \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] \\
 & \left[2 \cos \beta_2 \cos \alpha_2 \frac{\cos \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2 (z_2 - z_{20})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \sin \alpha_2 \frac{\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \sin \beta_2 \cos \alpha_2 \frac{\sin \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2 (z_2 - z_{20})}{c^2} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 F_3(X_k) = & \left[2 \cos \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \cos \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\
 & \quad \left. - 2 \sin \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] (z_2 - z_1) \\
 & - \left[-2 \sin \beta_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \cos \beta_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] (y_{2k} - y_{1k}) = 0
 \end{aligned}$$

$$F_4(X_k) = F_{41} + F_{42} = 0$$

$$\begin{aligned}
 F_{41} = & \left[2 \cos \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \cos \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & \left. -2 \sin \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] \\
 & \left[2 \sin \beta_2 \frac{\cos \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2 (z_2 - z_{20})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \cos \beta_2 \frac{\sin \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2 (z_2 - z_{20})}{c^2} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 F_{42} = & - \left[-2 \sin \beta_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \left. + 2 \cos \beta_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] \\
 & \left[-2 \cos \beta_2 \sin \alpha_2 \frac{\cos \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2 (z_2 - z_{20})}{a^2} \right. \\
 & \quad \left. + 2 \cos \alpha_2 \frac{\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right. \\
 & \quad \left. - 2 \sin \beta_2 \sin \alpha_2 \frac{\sin \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2 (z_2 - z_{20})}{c^2} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 F_5(X_k) = & \frac{(\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10}))^2}{a^2} \\
 & + \frac{(\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}))^2}{b^2} \\
 & + \frac{(\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10}))^2}{c^2} - 1 = 0
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 F_6(X_k) = & \frac{(\cos \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2 (z_2 - z_{20}))^2}{a^2} \\
 & + \frac{(\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}))^2}{b^2} \\
 & + \frac{(\sin \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2 (z_2 - z_{20}))^2}{c^2} - 1 = 0
 \end{aligned}$$

La méthode de Newton nous permet de trouver les coordonnées des points M_1 et M_2 . Le développement est décrit en annexe D.

Malheureusement, le temps de calculs extrêmement long pour générer le V.E.R. du modèle de dispersion d'ellipsoïdes, ne nous a pas permis de pouvoir modéliser un V.E.R. 3D.

2.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons abordé le développement de modèles numériques générant des dispersions aléatoires de particules dans un V.E.R. prédéfini. Deux types de géométries de particules ont été explorées : la sphère et l'ellipsoïde. En effet, nous avons constaté qu'en jouant sur les

dimensions d'un ellipsoïde, nous pouvions approcher la géométrie d'une majorité de particules dopantes.

Dans un premier temps, le développement d'un modèle de dispersion aléatoire de particules sphériques, de rayon constant, dans un V.E.R. cubique a été programmé sous JAVA. Les hypothèses fortes que nous avons énoncées sont :

- aucune périodicité dans le V.E.R. car nous nous situons dans le cas d'une dispersion aléatoire de particules sans motif répétitif ;
- toutes les sphères ont le même rayon.

Nous avons fait une étude de sensibilité sur ce modèle afin de voir l'influence de différents paramètres sur le comportement thermique de notre matrice dopée. Ainsi, nous avons analysé l'influence de la taille du V.E.R., de la taille du maillage, des conditions aux limites, du rayon moyen des particules et de la fraction volumique de particules. Nous avons ainsi pu mettre en évidence l'interaction entre la convergence des résultats et la taille du maillage et les conditions aux limites. Nous avons également défini un rapport idéal entre le rayon moyen des particules et la taille du V.E.R., $r/L = 0.06$.

Ces résultats numériques ont ensuite été comparés aux modèles analytiques présentés dans la chapitre 1. Nous avons ainsi mis en évidence un modèle analytique de référence : le modèle de Hamilton. En effet, même si ce modèle surestime légèrement les résultats de nos modèles numériques, il prend en compte la sphéricité des particules. Ainsi comme nous avons pu le voir dans la littérature, la géométrie des particules dopantes n'est pas toujours une sphère parfaite. Nous devons donc pouvoir nous appuyer sur un modèle analytique prenant en compte la géométrie des particules.

En ce sens, dans un second temps, nous avons développé un modèle de dispersion aléatoire de particules ellipsoïdales. Cette étude a été menée en deux étapes : un premier développement sur un modèle 2D puis un second développement sur un modèle 3D. La création du modèle 2D sous JAVA a permis de mettre en évidence l'incompatibilité entre calculs scientifiques complexes et langage JAVA et la nécessité d'utiliser un logiciel intermédiaire dédié tel qu'OCTAVE.

Quelques verrous informatiques nous ont empêché de faire aboutir certains de nos modèles. En effet, dans le cas du modèle de dispersion de sphères, la fraction volumique maximum de particules que nous pouvons simuler est de 20%. Cependant, cette limitation n'est pas une fin en soi car la matrice dopée doit être utilisée en complément d'un renfort de fibres longues de carbone. La fraction volumique des particules ne dépassera donc jamais cette valeur. Par contre, les temps de calculs nécessaires pour générer le V.E.R. du modèle de dispersion d'ellipsoïdes, ne nous ont pas permis de pouvoir modéliser un V.E.R. 3D.

Chapitre 3

Matrice chargée - Validation expérimentale

Sommaire

3.1	Introduction	86
3.2	Brefs rappels bibliographiques	86
3.3	Constituants	88
3.3.1	Choix de la matrice	88
	Échantillons fabriqués par RESCOLL	88
	Échantillons fabriqués par ICA	89
3.3.2	Choix des particules	89
	Échantillons fabriqués par RESCOLL	89
	Échantillons fabriqués par l'ICA	90
3.4	Procédés de mélange	92
3.5	Contrôle de la distribution de particules	92
	Échantillons fabriqués par RESCOLL	93
	Échantillons fabriqués par ICA	94
3.6	Détermination du coefficient de conductivité thermique par expérimentation	95
3.6.1	Mesure de diffusivité thermique par méthode flash	95
3.6.2	Mesure de la chaleur spécifique C_p	97
	3.6.2.1 Mesure par méthode flash	97
	3.6.2.2 Mesure par DSC	98
3.6.3	Mesure de la masse volumique	104
3.7	Comparaison des valeurs analytiques, numériques et expérimentales	107
3.7.1	Comparaison entre modèle analytique et résultats expérimentaux	107
3.7.2	Comparaison entre modèle numérique et résultats expérimentaux	114
3.8	Conclusion	116

3.1 Introduction

LA définition d'un modèle numérique nécessite une validation expérimentale afin de vérifier que le comportement thermique de la matrice chargée décrit par les modèles corrèle au plus près le comportement thermique réel du matériau créé.

Cette validation expérimentale s'est faite en plusieurs étapes :

- dans un premier temps dans le choix du type de matrice polymère ainsi que dans le choix des particules dispersées dans cette matrice
- dans un second temps avec l'analyse de la distribution réelle des particules dans cette matrice
- puis différentes mesures expérimentales afin de connaître au mieux les paramètres matériau
- enfin une comparaison entre les modèles analytiques, numériques et les résultats expérimentaux

3.2 Brefs rappels bibliographiques

Deux grandes catégories peuvent être distinguées au sein des résines dites organiques :

- les résines thermodurcissables ;
- les résines thermoplastiques.

Les thermodurcissables sont mis en forme et polymérisent par l'ajout d'un durcisseur.

Les thermoplastiques quant à eux sont mis en forme par chauffage et durcissent après refroidissement. La transformation est réversible.

La principale difficulté que nous rencontrons avec l'utilisation de matrices organiques est qu'elles n'ont aucune propriété de conduction thermique intrinsèque. Il a été démontré que la conduction thermique d'un matériau composite est fortement influencée par la matrice [2, 7, 9]. Ainsi le fait d'avoir des renforts conducteurs thermiques ne suffit pas à rendre un matériau composite conducteur thermique. En effet, la matrice polymère est isolante et la conductivité thermique des fibres diffère entre les sens parallèle et perpendiculaire aux fibres. Le coefficient de conductivité thermique dans le sens longitudinal est de l'ordre de quelques centaines de $W.m^{-1}.K^{-1}$ alors que dans le sens transverse il est de l'ordre de quelques $W.m^{-1}.K^{-1}$. Il est donc nécessaire d'injecter des charges conductrices thermiques afin de faire la liaison entre les renforts et la matrice. Il faut cependant veiller à ne pas augmenter la viscosité du mélange au point d'empêcher la mise en œuvre des renforts dans la matrice.

Dans la littérature, sont majoritairement utilisées les matrices de type résines époxydes. Quant aux matrices de type thermoplastique nous rencontrons principalement des polyoléfinés telles que le polypropylène (PP) ou le polyéthylène (PE).

En ce qui concerne les charges, la littérature distingue trois grandes familles :

- les charges carbonées ;
- les charges céramiques ;
- les charges métalliques.

Au sein de ces familles, les particules qui apparaissent le plus souvent sont les nanotubes de carbone (NTC) [53, 54, 63–65], les graphites [55, 66, 67], les nitrures de bore (NiB) [56, 68–72] et d'aluminium (AlN) [69, 70, 73], le carbure de silicium (SiC) [54, 65, 70, 73], le noir de carbone [74] et les particules métalliques [64, 72, 75].

Afin d'obtenir une synergie entre les particules et la matrice, il est courant de mélanger différentes charges afin de combiner différentes granulométries (micro et nanométrique) et/ou différentes morphologies de particules (feuilletés, tubes, sphères).

La figure 3.1 récapitule les différentes valeurs du coefficient de conductivité thermique que nous avons pu trouver dans la littérature pour différents types de particules et de résines, ainsi que pour différentes concentrations de particules dans la résine.

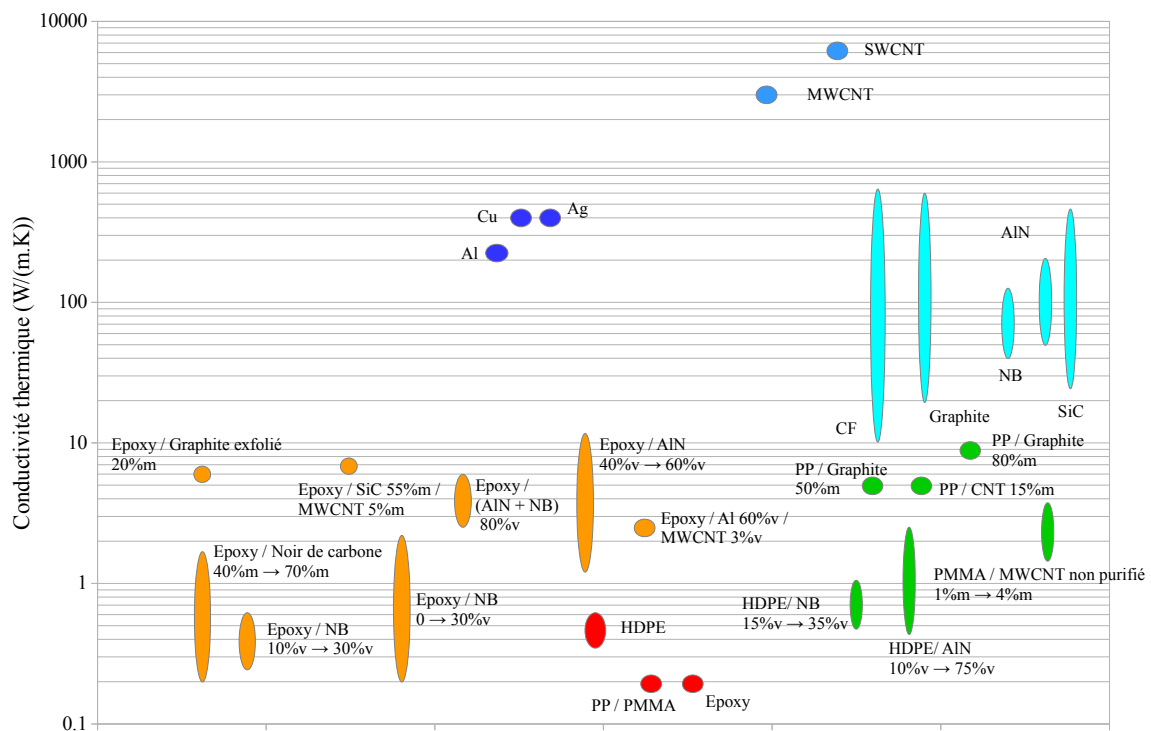


FIGURE 3.1 – Etat de l'art des différents types de particules utilisées avec leur coefficient de conductivité thermique associé [53–56, 63–75]

Nous constatons ainsi que les charges ayant le coefficient de conductivité thermique le plus élevé sont les nanotubes de carbone. Les charges de types graphite, nitrure de bore (NiB), nitrure d'aluminium (AlN), carbure de silicium (SiC) ont des valeurs de coefficient de conductivité thermique très variables (entre 20 et $600 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$). Quant aux différentes résines nous observons que les valeurs des coefficients de conductivité thermique pour les résines époxy et polypropylène sont de l'ordre de $0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ alors que pour le polyéthylène les valeurs vont de 0.35 à $0.6 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$.

Il faut cependant mettre en évidence que ces valeurs ne sont qu'approximatives et difficilement comparables les unes avec les autres de par la méthode de caractérisation du coefficient

de conductivité thermique qui varie d'une publication à l'autre et de par le panel très varié de matériaux et fractions volumiques utilisés. Par exemple, Han et al. [68] ont mesuré la conductivité thermique d'échantillons de matrice époxy chargée de particules de NiB de 10% à 30% en volume. Ils ont obtenus des conductivités thermiques comprises entre 0.24 et 0.47 $W.m^{-1}.K^{-1}$. Bujard [56] a, quant à lui, mesuré des échantillons de matrice époxy chargée de particules de NiB de 0 à 30% en volume et à trouver les conductivités thermiques comprises entre 0.2 et 2.25 $W.m^{-1}.K^{-1}$. Cet exemple illustre bien la difficulté de comparer des résultats expérimentaux. Nous pouvons, de plus, noter que les méthodes de caractérisation qui sont le plus souvent utilisées sont soit la méthode flash, soit les techniques de source transitoire telles que le *Hot Disk* ou le fil chaud.

3.3 Constituants

Afin de valider nos modèles numériques nous avons développé différents types d'échantillons en nous appuyant sur la littérature pour le choix des constituants. Les échantillons ont été produits par deux groupes de travail :

- un premier groupe d'échantillons a été fabriqué par la société RESCOLL, partenaire du projet THEOREM
- un second groupe d'échantillons a été préparé au sein de l'Institut Clément Ader (ICA) avec nos propres moyens

3.3.1 Choix de la matrice

Échantillons fabriqués par RESCOLL Notre cahier des charges définit que notre matériau final doit :

- avoir un coefficient de conductivité thermique amélioré équivalent à celui de l'aluminium ($\simeq 300 W.m^{-1}.K^{-1}$)
- avoir une tenue feu/fumée certifiée pour l'environnement aéronautique
- avoir une densité la plus faible possible (inférieure à celle de l'aluminium)
- avoir une tenue mécanique équivalente voire supérieure à celle de l'aluminium

Au vue de ces critères et sachant que les paramètres de conductivité thermique et de tenue feu/fumée sont primordiaux, certaines pistes présentées dans la bibliographie ne sont pas envisageables :

- au niveau des charges : le noir de carbone ne permet pas d'atteindre des coefficients de conductivité thermique élevés malgré une importante fraction volumique de particules [74] ;
- au niveau de la matrice : les matrices polyoléfiniques ne sont pas utilisables puisque le cahier des charges spécifie que les produits doivent être certifiés d'un point de vue feu/fumée.

Trois options de production ont été envisagées par RESCOLL pour caractériser notre matrice dopée :

Option 1 : utiliser une résine standard et la formuler pour améliorer son coefficient de conductivité thermique et sa tenue feu/fumée ;

Option 2 : utiliser une résine homologuée aéronautique d'un point de vue tenue feu/fumée et la formuler pour améliorer son coefficient de conductivité thermique ;

Option 3 : utiliser une résine possédant déjà un coefficient de conductivité thermique optimisé et la formuler pour la rendre conforme aux spécifications aéronautique de tenue feu/fumée.

En accord avec l'end user du projet (à savoir THALES Systèmes Aéroportés), la société RESCOLL a décidé de produire dans un tout premier temps des matrices chargées correspondant à l'option 1 avec pour but la simplification de la procédure de sélection des charges particulières dopantes. Dans un second temps, l'option 2 sera considérée. Il s'agira là pour notre partenaire d'apporter la propriété, tenue au feu, une fois les charges dopantes sélectionnées. Les différentes matrices qui ont été sélectionnées sont répertoriées dans le tableau 3.1.

Option	Type	Nom commercial	Durcisseur	Fournisseur
Option 1	DGEBA	Araldite LY556	Jeffamine D230	Huntsman
Option 1	DGEBA	Araldite LY5052	Aradur 5052	Huntsman
Option 2	DGEBA	SR1126	SD8203	Sicommin
Option 2	Polycyanurate	PT30	-	Lonza

TABLEAU 3.1 – Sélection des résines (RESCOLL)

Échantillons fabriqués par ICA Afin de disposer d'un nombre d'échantillons plus grand et surtout élargir la palette des particules dopantes utilisées, nous avons pris l'initiative - hors cadre du projet THEOREM - de produire nos propres échantillons de résine époxy dopée. L'idée est de venir compléter en termes de matériaux dopants et de géométrie de particules dopantes les choix de RESCOLL. La matrice employée à l'ICA est produite par la société MAP sous la référence *R.12.13.03.i*.

3.3.2 Choix des particules

Échantillons fabriqués par RESCOLL Sur la base des résultats de la littérature relatifs à la conductivité thermique des matrices organiques dopées et en considération du cahier des charges, RESCOLL a choisi de tester différents types de particules tels que les nitrure de bore (NiB), nitrure d'aluminium (AlN), graphite, nanofibres de carbone (NFC), nanotubes de carbone (NTC) et poudre d'aluminium. Le tableau 3.3 récapitule les différentes particules choisies ainsi que leur surface spécifique, leur *d50* et leur fournisseur.

Pour des raisons de confidentialité, dans le cadre de l'accord de consortium du projet THEOREM, nous ne pourrions présenter que les résultats obtenus pour les particules d'aluminium Z600.

Les particules Z600 étant en aluminium nous nous sommes basés sur les données classiques de l'aluminium, à savoir un coefficient de conductivité thermique, $\lambda_{Z600} = 237 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, une chaleur spécifique, $C_{pZ600} = 0.880 \text{ J.g}^{-1}.\text{°C}^{-1}$ et une masse volumique $\rho_{Z600} = 2700 \text{ kg.m}^{-3}$.

Échantillons fabriqués par l'ICA Dans ce cas-ci nous avons choisi d'approvisionner des poudres d'aluminium et de cuivre qui ont une mise en œuvre simple en adéquation avec les moyens de production disponibles au sein du laboratoire. Les particules utilisées sont répertoriées dans le tableau 3.2.

Il nous faut cependant mettre en avant les principaux freins que nous risquons de rencontrer lors de la mise en œuvre de ces particules à la fois avec la matrice mais également avec les renforts :

- dans le cas de charges micrométriques, il existe un risque d'avoir une importante filtration de ces charges par le renfort
- dans le cas de charges ayant une surface spécifique trop élevée, il existe un risque d'avoir une importante augmentation de la viscosité empêchant la mise en œuvre de la résine par des procédés industriels

Néanmoins, il est très important de souligner que ces deux questionnements sont hors périmètre de ce travail de thèse.

Type	Surface spécifique (m^2/g)	d50 (μm)	Nom commercial	Fournisseur
Poudre d'aluminium	0.641	9.752	10 μ <i>sphérique</i>	Toyal
Poudre de cuivre électrolytique	NC	10.3	Grade 47625	Pometon

TABLEAU 3.2 – Particules testées par l'ICA

Type	Surface spécifique (m^2/g)	d50 (μm)	Nom commercial	Fournisseur
Nitrure de bore	NC	ϕ plus gros agglomérat : 200	CTH10MHF	St Gobain
Nitrure de bore	8	6 (feuilletés)	CTF5	St Gobain
Nitrure de bore	NC	NC (agglomérats)	SHP40	St Gobain
Nitrure de bore	20	< 1 (feuilletés)	CTP05	St Gobain
Nitrure d'aluminium	NC	15	FLX	Toyal
Nitrure d'aluminium	NC	13	PLZ-1	Toyal
Poudre d'aluminium	1.9	3.3	ABW 489	Toyal
Poudre d'aluminium	1	6.4	Z600	Toyal
Graphite	9	19	Timrex KS44	Timcal
Graphite	6	27	Timrex KS5-44	Timcal
Graphite expansé	22	39	Timrex CTherm002	Timcal
Graphite	24	39	Timrex CTherm011	Timcal
Graphite expansible	NC	150	Firecarb TEG315	Minelco
Graphite	12.1	25	GS50M	Graftech
Nanofibres de carbone	41	diamètre fibre : 100 nm	PR24-XT-HHT	Applied Science
Nanotubes de carbone dans DGEBA	NC	NC	CSI25	Arkema

TABLEAU 3.3 – Particules testées par RESCOLL. Les valeurs de λ , ρ et C_p des particules n'ont pas été fournies. Pour les particules Z600 : $\lambda_{Z600} = 237 W.m^{-1}.K^{-1}$, $\rho_{Z600} = 2700 kg.m^{-3}$ et $C_{pZ600} = 0.880 J.g^{-1}.^{\circ}C^{-1}$

3.4 Procédés de mélange

Le procédé de mélangeage des échantillons du lot RESCOLL est décrit Figure 3.2 et en suivant :

- les premiers mélanges-maîtres de prépolymère chargé (LY556) sont obtenus en utilisant un mélangeur à pales
- des échantillons de ces mélanges-maîtres sont ensuite dilués et mélangés à l'aide du durcisseur D230 afin d'obtenir des échantillons ayant des fractions massiques de particules comprises entre 0 et 27.5% en masse.
- ces différents mélanges sont coulés dans des moules rectangulaires de 80x10x3 mm, puis cuits dans un four pendant deux heures à 80 ° C puis une heure à 120 ° C.
- des pastilles de 10 mm de diamètre sont enfin découpées dans ces blocs et soumises à une mesure de diffusivité thermique par méthode flash. Le coefficient de conductivité thermique est finalement défini par calcul par l'intermédiaire de l'équation(3.1) :

$$\lambda = a\rho C_p \quad (3.1)$$

avec a la diffusivité thermique de l'échantillon, ρ la masse volumique de l'échantillon et C_p la chaleur spécifique de l'échantillon. La masse volumique est déterminée par une pesée par immersion dans l'eau, tandis que la chaleur spécifique est définie par une mesure par analyseur thermique différentiel ou *Differential Scanning Calorimetry* (DSC).

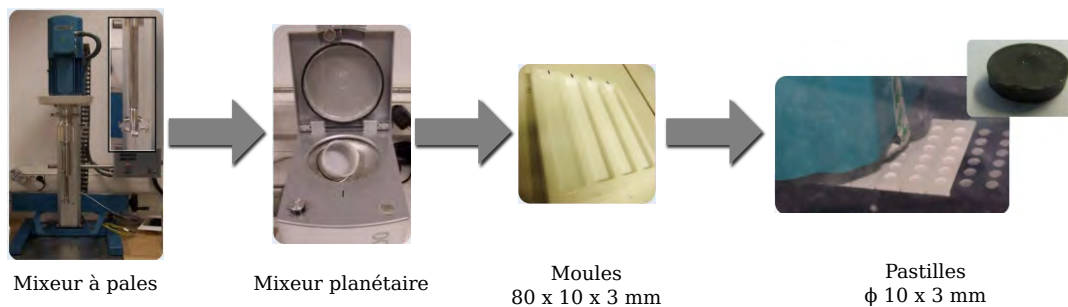


FIGURE 3.2 – Procédé de dispersion des particules dans la matrice

La dispersion des particules d'aluminium et de cuivre à l'ICA a été faite de façon similaire à la procédure suivie chez RESCOLL. La différence est que les échantillons produits sont des plaques de 150x40x2 mm coulées dans un moule en aluminium et polymérisées en étuve suivant les conditions de température recommandées par le formulateur du système époxy. Les fractions volumiques de particules introduites sont comprises entre 0 et 15 %.

3.5 Contrôle de la distribution de particules

Nous avons analysé nos différents échantillons au microscope optique et au microscope électronique à balayage (MEB), afin de mieux comprendre la dispersion et la géométrie de nos particules.

Échantillons fabriqués par RESCOLL La figure 3.3 montre la tranche des échantillons de matrice époxy chargée de particules d'aluminium Z600.

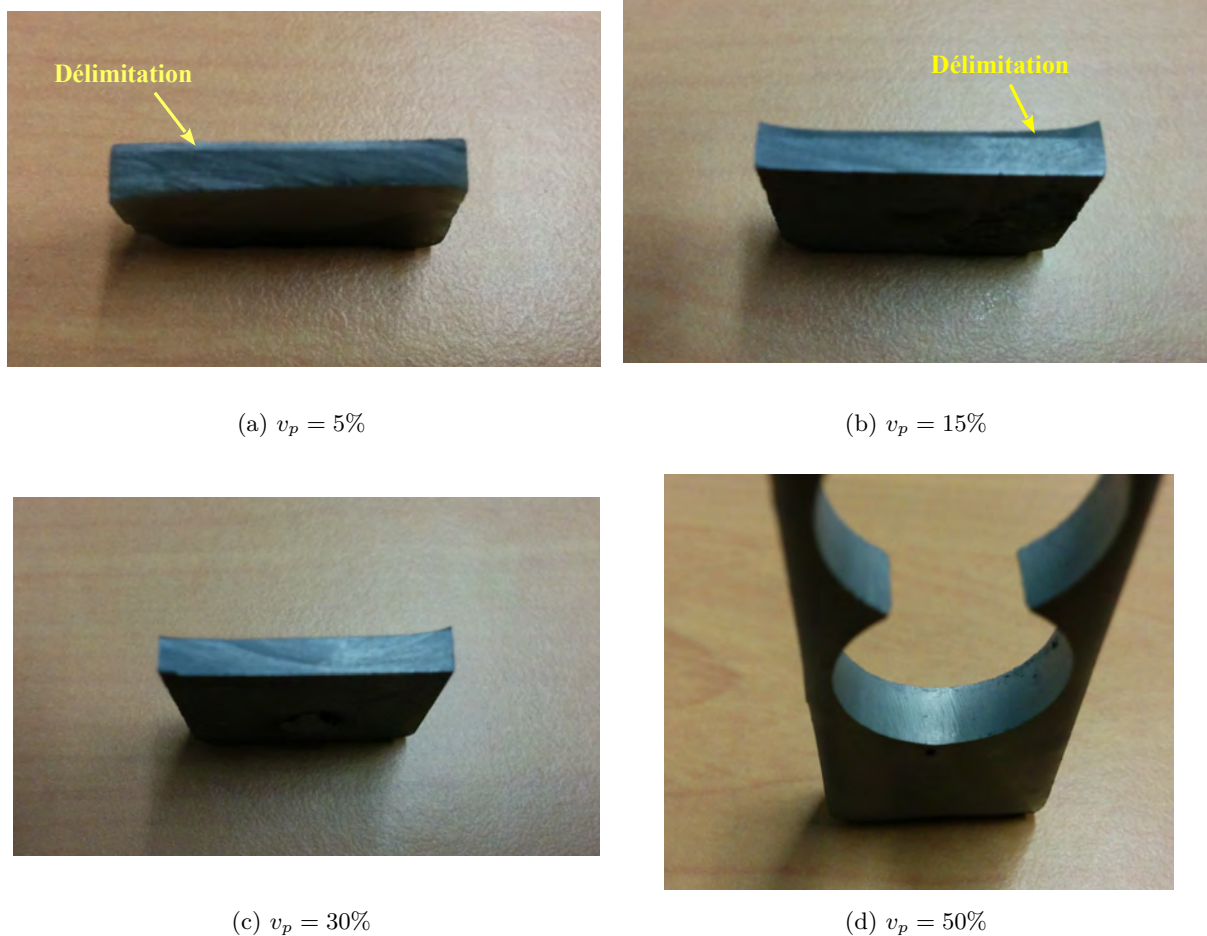


FIGURE 3.3 – Photos dans l'épaisseur, des échantillons de matrice époxy chargée de particules d'aluminium Z600

Nous observons dans l'épaisseur des échantillons ayant une fraction volumique de particules de 5% (Figure 3.3a) et 15% (Figure 3.3b) une délimitation de phase.

La figure 3.4 montrent une observation au microscope optique de ces tranches.

Ainsi, nous remarquons que les échantillons ayant une fraction volumique de 5% (Figure 3.4a) et 15% (Figure 3.4b), présentent une sédimentation plus ou moins importante des particules. Par contre, les échantillons ayant une fraction volumique de 30% (Figure 3.4c) ou 50% (Figure 3.4d) ont une répartition assez homogène des particules dans l'épaisseur de l'échantillon. Cette sédimentation s'explique par la mise en œuvre des échantillons. En effet, une fois les particules dispersées dans la matrice, le mélange maître est coulé dans un moule. Du fait de la faible quantité de particules sur les deux premiers cas, un phénomène de sédimentation apparaît. Les échantillons ayant une fraction volumique de particules de 30% et 50% ont suffisamment de particules en leur sein pour empêcher le phénomène de sédimentation de se produire.

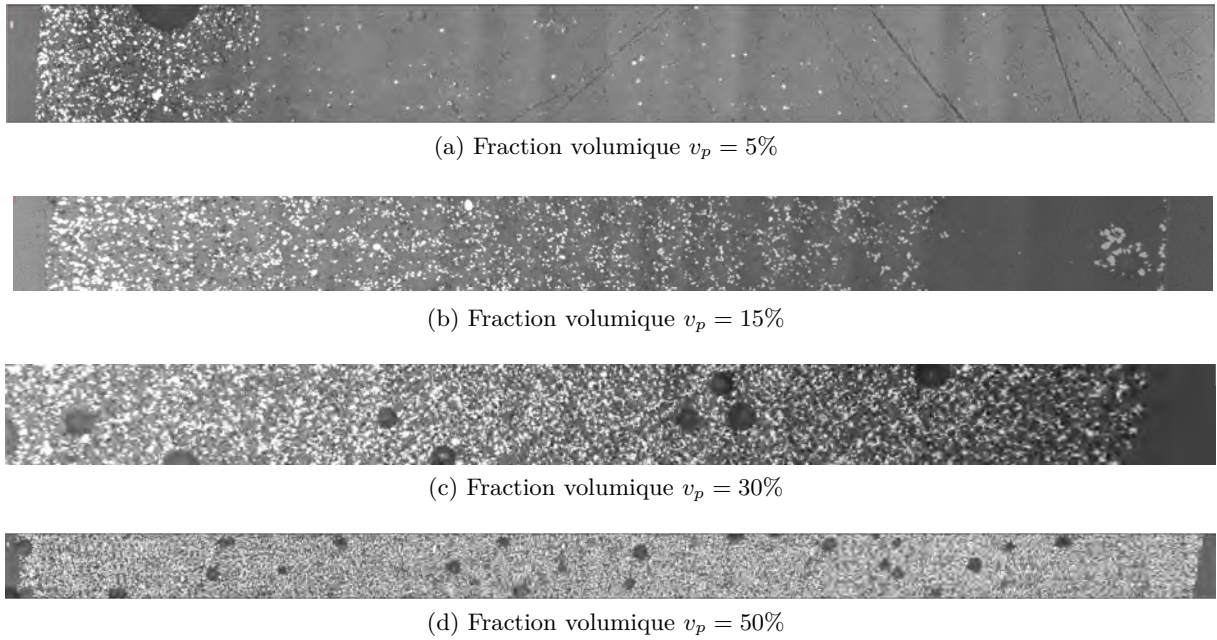


FIGURE 3.4 – Observation au microscope optique de matrice chargée de particules d'aluminium Z600

Échantillons fabriqués par ICA Nous n'avons pas eu les problèmes de sédimentation rencontrés par RESCOLL. Nous avons donc effectué des observations au Microscope Electronique à Balayage (MEB) afin de mieux voir la géométrie de nos particules. La figure 3.5 nous montre ainsi que les particules d'aluminium ont bien une forme sphérique telle que nous l'a annoncé notre fournisseur.

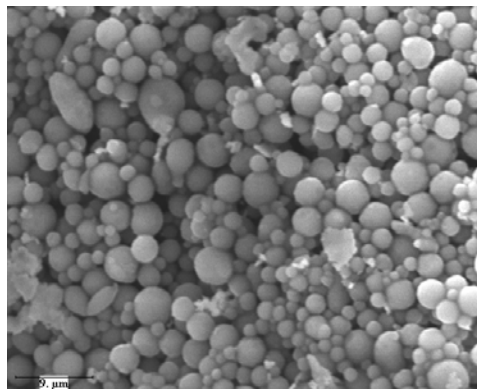
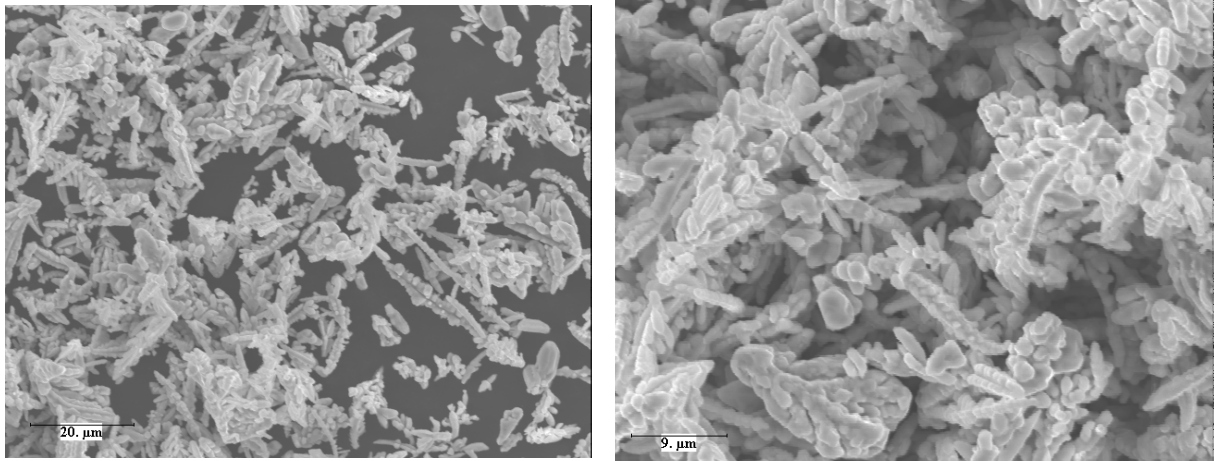


FIGURE 3.5 – Particules d'aluminium 10μ *sphérique* seules avant dispersion (MEB)

Les figures 3.6a et 3.6b montrent quant à elles la géométrie des particules de cuivre. Nous observons ainsi qu'elles n'ont absolument pas une forme sphérique mais dendritique avec majoritairement des particules de type aiguilles. Nous verrons par la suite l'influence de la forme des particules sur le coefficient de conductivité thermique de notre matrice dopée.



(a) Observation MEB Grandissement x 1000

(b) Observation MEB Grandissement x 2000

FIGURE 3.6 – Particules de cuivre

3.6 Détermination du coefficient de conductivité thermique par expérimentation

Pour déterminer le coefficient de conductivité thermique de nos échantillons aussi bien RESCOLL que l'ICA avons choisi d'utiliser un système fonctionnant par méthode flash. Cette méthode de mesure est une méthode de mesure indirecte du coefficient de conductivité thermique. En effet, la méthode flash donne une mesure de la diffusivité thermique de l'échantillon. C'est également une méthode sans contact et c'est là un énorme intérêt. En effet, la littérature met en évidence des résultats relativement dispersés [53, 54, 63–65] obtenus avec des méthodes impliquant des contacts entre matériau d'étude et matériau d'appareils ou de dispositifs de mesure. En méthode flash LASER la question de la contribution de la résistance de contact ne se pose pas.

La valeur du coefficient de conductivité thermique est ainsi déduite par l'équation(3.1) présentée dans la section 3.4. Cette équation est fonction de la diffusivité thermique, a , de la chaleur spécifique, C_p , et de la masse volumique, ρ , de l'échantillon. Nous allons donc présenter dans un premier temps les mesures de diffusivité thermique puis les mesures de chaleur spécifique afin d'en déduire les valeurs du coefficient de conductivité thermique de nos échantillons.

3.6.1 Mesure de diffusivité thermique par méthode flash

Pour effectuer les mesures de diffusivité thermique par méthode flash, deux systèmes ont été utilisés :

- le Nanoflash LFA 447 de NETZSCH pour RESCOLL
- le Microflash LFA 457 de NETZSCH pour ICA

Les caractéristiques de ces deux appareils sont décrites dans le tableau 3.4.

Les échantillons sont sous forme de carré de 10 *mm* de côté (ICA) ou de disque de 10 *mm* de diamètre (RESCOLL).

	LFA 447	LFA 457
Source du flash	Lampe Xenon	LASER Nd-YAG
Longueur d'onde	150 <i>nm</i> à 2000 <i>nm</i>	1064 <i>nm</i>
Énergie du pulse	jusqu'à 10 <i>J</i>	jusqu'à 18 <i>J</i>
Détecteur	InSb (1000 à 5500 <i>nm</i>)	InSb (1000 à 5500 <i>nm</i>) MCT (2000 à 13500 <i>nm</i>)
Température d'utilisation	Ambiante	-125 ° C à 500 ° C
Diffusivité thermique		0.01 à 1000 <i>mm</i> ² / <i>s</i>
Conductivité thermique		0.1 à 2000 <i>W/m/K</i>

TABLEAU 3.4 – Caractéristiques des deux systèmes de mesure de diffusivité thermique de NETZSCH

Le principe de fonctionnement est le suivant. La mesure de diffusivité thermique est effectuée par l'échauffement rapide d'une face de l'échantillon et la mesure de l'augmentation de température sur la face opposée. Une fois l'échantillon stabilisé à la température souhaitée, le LASER tire plusieurs fois sur quelques minutes. Les données de chaque tir sont enregistrées. L'énergie du faisceau est absorbée par une des faces de l'échantillon provoquant un pulse de chaleur qui va traverser l'épaisseur de l'échantillon. L'augmentation de température résultante est mesurée sur la face opposée en fonction du temps par un détecteur infrarouge. Cette augmentation est faible, entre 0.5 ° C et 2 ° C. Le temps que met la chaleur à traverser l'échantillon et à produire l'augmentation de température sur la face opposée permet de mesurer la diffusivité thermique. Les mesures de diffusivité thermique des échantillons d'aluminium et de cuivre sont répertoriées dans le tableau 3.5.

Les mesures des échantillons du lot ICA ont été sous-traités auprès de NETZSCH en attendant la réception de notre propre dispositif de mesure. De ce fait, nous n'avons jamais pu avoir accès aux écart types de ces mesures.

La détermination du coefficient de conductivité thermique se fait dans un second temps avec les valeurs de chaleur spécifique et de masse volumique. Nous allons passer maintenant à la mesure de la chaleur spécifique C_p .

RESCOLL (mm^2/s)		ICA (mm^2/s)	
Résine pure	0.140 (± 0.005)	Résine pure	0.105
$v_p = 5\%$	0.178 (± 0.012)	$v_p = 5\%$	0.145
$v_p = 15\%$	0.270 (± 0.009)	Alu	$v_p = 10\%$ 0.175
$v_p = 30\%$	0.415 (± 0.005)	$v_p = 15\%$	0.218
$v_p = 50\%$	0.788 (± 0.003)	$v_p = 5\%$	0.189
		Cuivre	$v_p = 10\%$ 0.292
		$v_p = 15\%$	0.396

TABLEAU 3.5 – Mesures de diffusivité thermique des échantillons chargés de particules d'aluminium et de cuivre à 23°C

3.6.2 Mesure de la chaleur spécifique C_p

3.6.2.1 Mesure par méthode flash

Les deux appareils décrits précédemment permettent également de déterminer la chaleur spécifique des échantillons. La valeur de la chaleur spécifique de l'échantillon, C_{pe} , est déterminée en comparant l'augmentation de température de l'échantillon à caractériser avec celle d'un échantillon référence ayant été caractérisé avec les mêmes conditions aux limites (équation(3.2)).

$$C_{pe} = \frac{\Delta T_r \rho_r e_r}{\Delta T_e \rho_e e_e} C_{pr} \quad (3.2)$$

avec C_{pi} , la chaleur spécifique de l'échantillon, ΔT_i , la température de l'échantillon après stabilisation, ρ_i la masse volumique de l'échantillon et e_i l'épaisseur de l'échantillon. $i = e$ (échantillon à caractériser) ou r (échantillon référence).

Il faut faire attention avec la méthode de détermination de la chaleur spécifique par la méthode flash. En effet, cette méthode ne fonctionne que si l'échantillon de référence et l'échantillon à caractériser ont une chaleur spécifique et une épaisseur proches. Le tableau 3.6 référence les valeurs de chaleur spécifique obtenues pour les échantillons de matrice chargée de particules d'aluminium Z600.

La difficulté pour bien évaluer la valeur de la chaleur spécifique est donc de trouver l'échantillon de référence le plus adapté. Cette méthode entraîne une faible précision du résultat. Nous avons donc choisi de déterminer la chaleur spécifique des autres échantillons à l'aide d'un analyseur thermique différentiel ou *Differential Scanning Calorimetry* (DSC).

v_p (%)	C_p (J/g/K)
0	1.320
5	1.233 (± 0.08)
15	1.019 (± 0.05)
30	0.934 (± 0.01)
50	0.910 (± 0.03)

TABLEAU 3.6 – Mesures moyennes de C_p à 23°C des échantillons chargés de particules d'aluminium Z600

3.6.2.2 Mesure par DSC

Nous avons utilisé une DSC modulée Q100 de TA Instruments.

La calibration de l'appareil se fait à l'aide d'un échantillon d'indium et la mesure de la chaleur spécifique se fait par l'intermédiaire d'un échantillon de saphir. En effet, TA Instrument fournit un tableau des valeurs théoriques de la chaleur spécifique du saphir à différentes températures. Une première mesure est faite sur le saphir afin de calibrer l'appareil par rapport aux valeurs théoriques.

La calibration de l'appareil à l'aide du saphir permet de tester n'importe quel matériau contrairement à la méthode flash qui nécessite une référence ayant des caractéristiques thermiques et géométriques proches de l'échantillon à caractériser.

Néanmoins, afin de pouvoir considérer ces mesures comme valides les précautions suivantes sont à prendre :

- les creusets utilisés pour les calibrations et les mesures doivent tous être appairés en masse
- la masse des échantillons doit être comprise entre 10 et 20 mg idéalement
- il faut contrôler la planéité du creuset après le sertissage afin d'optimiser les échanges thermiques entre l'échantillon et le capteur de mesure.

Nous avons effectué plusieurs mesures pour tous les échantillons.

La figure 3.7 montre les différentes courbes de chaleur spécifique des échantillons de matrice chargée de particules d'aluminium Z600.

Nous observons deux anomalies sur la figure 3.7b. Les valeurs de C_p des échantillons 4 et 5 chutent respectivement aux alentours de 100 °C et 180 °C. Nous avons constaté à l'ouverture du four que les capsules de ces échantillons étaient ouvertes et le dessus tombé au fond du four. La variation brutale de la masse a entraîné la chute de la valeur du C_p . Nous avons remarqué le même phénomène sur l'échantillon 1 de résine pure (figure 3.7e) qui a entraîné une chute du C_p aux alentours de 80 °C. Le tableau 3.7 regroupe les valeurs de C_p à 23 °C pour les échantillons que nous venons de présenter. Nous constatons ainsi que la valeur du C_p diminue quand la

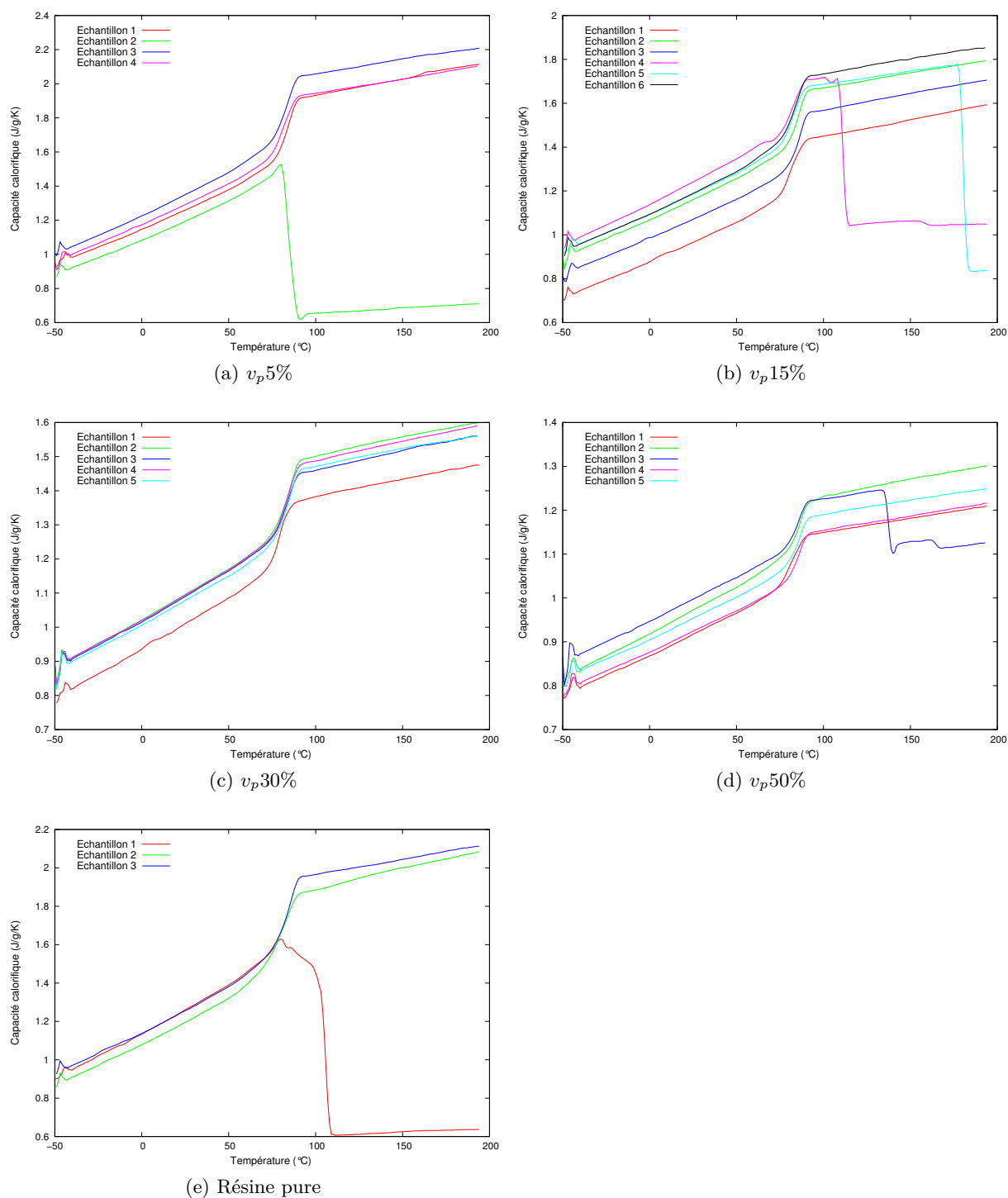


FIGURE 3.7 – Mesures de C_p par DSC sur les échantillons de matrice dopée par des particules d'aluminium Z600

fraction volumique de particules introduites dans la matrice époxy augmente et pour lesquels les essais se sont déroulés correctement

v_p (%)	C_p (J/g/K)				
	Echantillon 1	Echantillon 2	Echantillon 3	Echantillon 4	Echantillon 5
0	1.250	1.186	1.247	-	-
5	1.251	1.184	1.308	1.340	1.282
15	0.9588	1.153	1.063	1.176	1.181
30	1.040	1.090	1.084	1.088	1.072
50	0.9131	0.9683	0.9931	0.9203	0.9498

TABLEAU 3.7 – Comparaison des valeurs de C_p à 23 ° C obtenues par DSC des échantillons de résine époxy LY556/D230 chargés de particules d'aluminium Z600

Dans la littérature certains auteurs [76] ont utilisé la loi des mélanges (équation(3.3)) pour déterminer la chaleur spécifique d'un matériau composite.

$$C_{pc} = v_p C_{pp} + (1 - v_p) C_{pm} \quad (3.3)$$

avec C_{pc} la chaleur spécifique du composite, C_{pp} la chaleur spécifique des particules, C_{pm} la chaleur spécifique de la matrice et v_p la fraction volumique de particules.

Le tableau 3.8 et la figure 3.8 comparent l'évolution des valeurs de C_p en fonction de la fraction volumique de particules d'aluminium Z600, v_p , obtenues par méthode flash, par DSC et par la loi des mélanges. Nous observons ainsi que :

- les mesures faites par Nanoflash sous estiment les valeurs obtenues par DSC. De plus, l'écart de mesures entre les deux méthodes est assez important : il est supérieur à 10% pour une fraction volumique de particules de 30% ou 50%.
- le calcul de C_{pc} par la loi des mélanges surestime les valeurs obtenues par DSC. L'écart entre la loi des mélanges et la mesure par DSC n'est pas négligeable mais reste inférieure à l'écart de la méthode flash.

Nous remarquons ainsi que l'écart de mesure annoncé par les constructeurs est légèrement inférieur à ce que nous trouvons. En effet, l'écart de mesure du C_p par DSC est de l'ordre de 2% à 3%, tandis que par la méthode flash elle est de l'ordre de 5%.

Le tableau 3.9 et les figures 3.9, 3.10 comparent l'évolution des valeurs de C_p en fonction de la fraction volumique, v_p , de particules d'aluminium ou de cuivre (lot ICA), obtenues par DSC.

Nous constatons ainsi que les valeurs de C_p obtenues par DSC pour les échantillons de cuivre diminuent quand la fraction volumique augmente. De même, pour les valeurs obtenues par la loi des mélanges. Par contre, l'écart sur la loi des mélanges est très important. Cela peut être

v_p (%)	C_p (J/g/K)				
	DSC	Flash	Écart (%)	Loi Mélanges	Écart (%)
0	1.228 (± 0.036)	1.320	+6.96	-	-
5	1.295 (± 0.038)	1.233 (± 0.08)	-5.02	1.2106	-7.0
15	1.161 (± 0.062)	1.019 (± 0.05)	-13.9	1.1758	+1.3
30	1.075 (± 0.021)	0.934 (± 0.01)	-15.1	1.1236	+4.3
50	0.949 (± 0.033)	0.910 (± 0.03)	-4.3	1.054	+10;0

TABLEAU 3.8 – Comparaison des valeurs de C_p à 23 ° C en fonction de la fraction volumique v_p pour les mesures faites en DSC, Nanoflash et déterminées par la loi des mélanges sur les échantillons de résine époxy LY556/D230 chargés de particules d'aluminium Z600

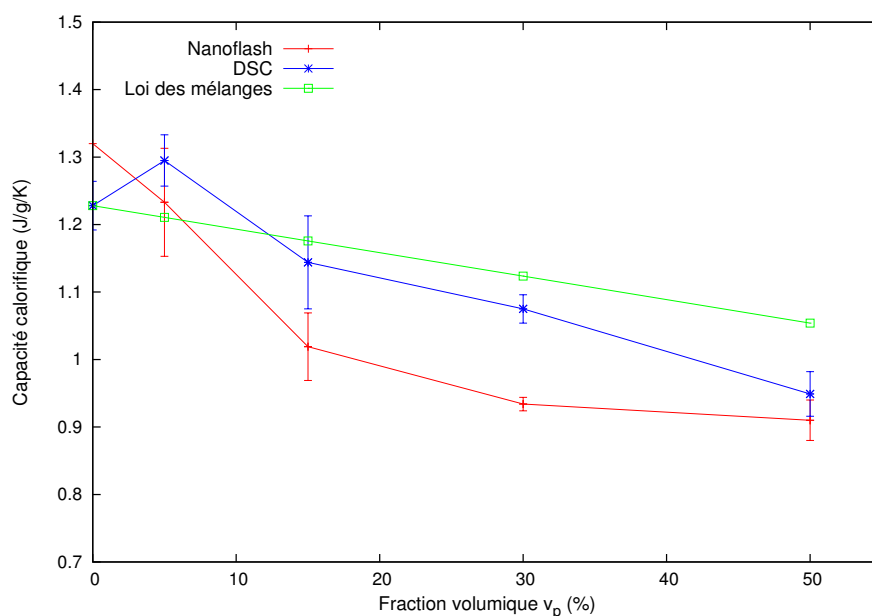


FIGURE 3.8 – Comparaison des valeurs moyennes de C_p à 23 ° C en fonction de la fraction volumique, v_p , des mesures faites en DSC et Nanoflash et de la loi des mélanges, sur les échantillons de résine époxy LY556/D230 chargés de particules d'aluminium Z600

dû soit à la géométrie particulière des particules (dendrites Figure 3.6b, p. 95), soit la valeur du C_p des particules que nous avons choisie équivalente à celle du cuivre n'est pas la même dans le cas de poudre. Nous n'avons malheureusement pas eu la possibilité de faire des mesures de C_p sur la poudre seule.

Si maintenant nous regardons les résultats obtenus sur les particules d'aluminium des lots de RESCOLL et de l'ICA, nous constatons un problème dans l'évolution du C_p . En effet, le C_p est censé diminuer quand la fraction volumique de particules augmente. Or dans le cas des particules d'aluminium Z600, la valeur du C_p augmente pour une fraction volumique de particules de 5%,

avant de diminuer normalement quand la fraction volumique de particules augmente. De même, dans le cas des échantillons chargés de particules d'aluminium produits par l'ICA, nous observons le même phénomène pour une fraction volumique de particules de 10%.

Comme nous l'avons observé précédemment, pour les particules d'aluminium Z600, dans le cas d'une fraction volumique de 5%, il y a un phénomène de sédimentation des particules dans la matrice. Le fait d'avoir une telle variabilité dans les valeurs de C_p mesurées peut s'expliquer par le fait que les particules n'étant pas réparties de manière homogène dans l'épaisseur, la fraction volumique réelle ne correspond pas à 5%. D'ailleurs si nous regardons les détails des mesures sur le tableau 3.7 nous constatons finalement, que sur les cinq échantillons testés, seul l'échantillon n°2 donne un résultat en cohérence avec l'évolution des valeurs de C_p attendues.

v_p (%)	C_p (J/g/K)	
	Aluminium	Cuivre
0	1.248 (± 0.0312)	
5	1.204 (± 0.0301)	1.129 (± 0.0282)
10	1.271 (± 0.0318)	0.9194 (± 0.0230)
15	1.267 (± 0.0317)	0.8119 (± 0.0203)

TABLEAU 3.9 – Mesures de C_p à 23 ° C des échantillons chargés de particules d'aluminium et de cuivre produits par l'ICA

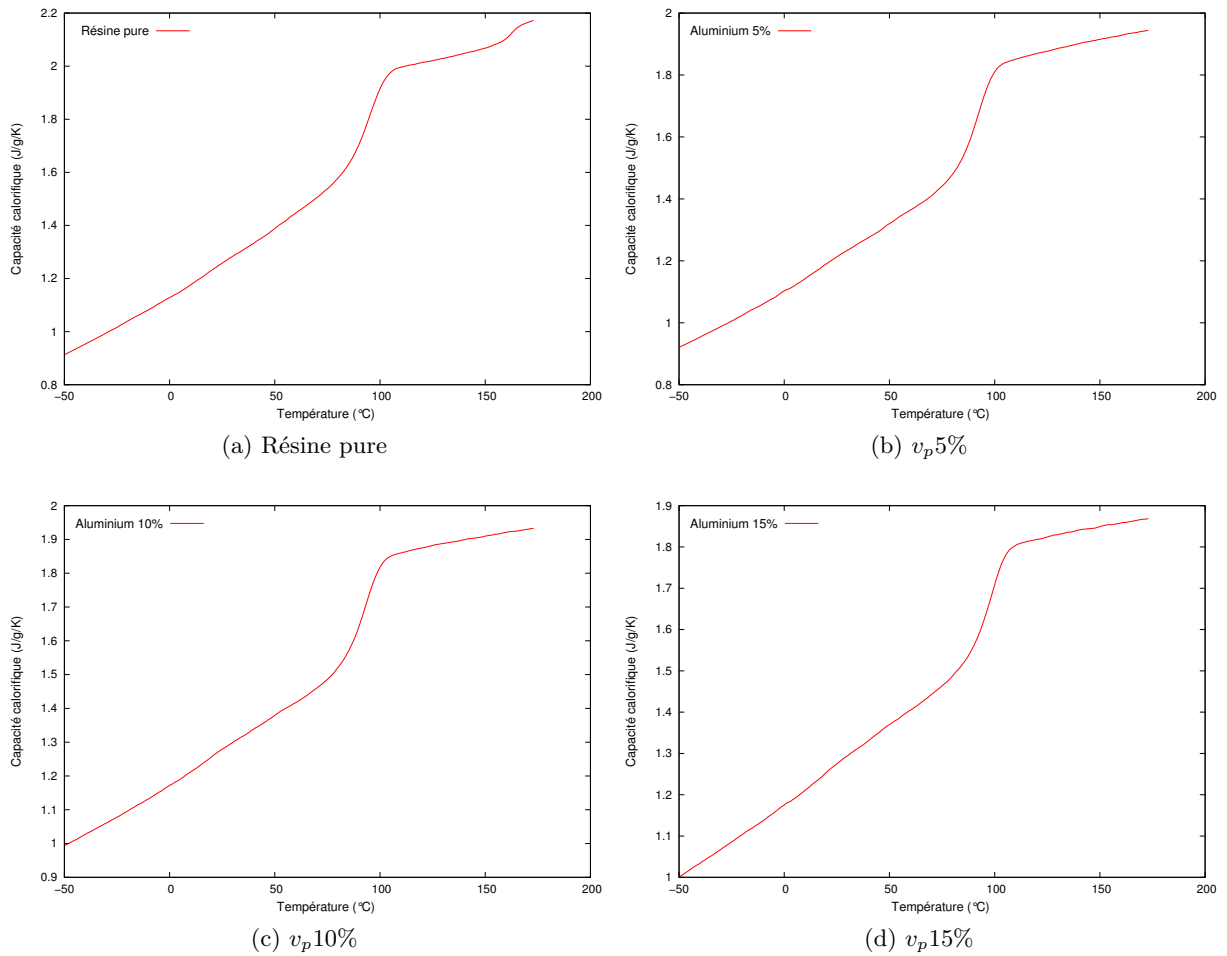


FIGURE 3.9 – Mesures de C_p par DSC sur les échantillons de matrice dopée par des particules d'aluminium 10μ sphérique

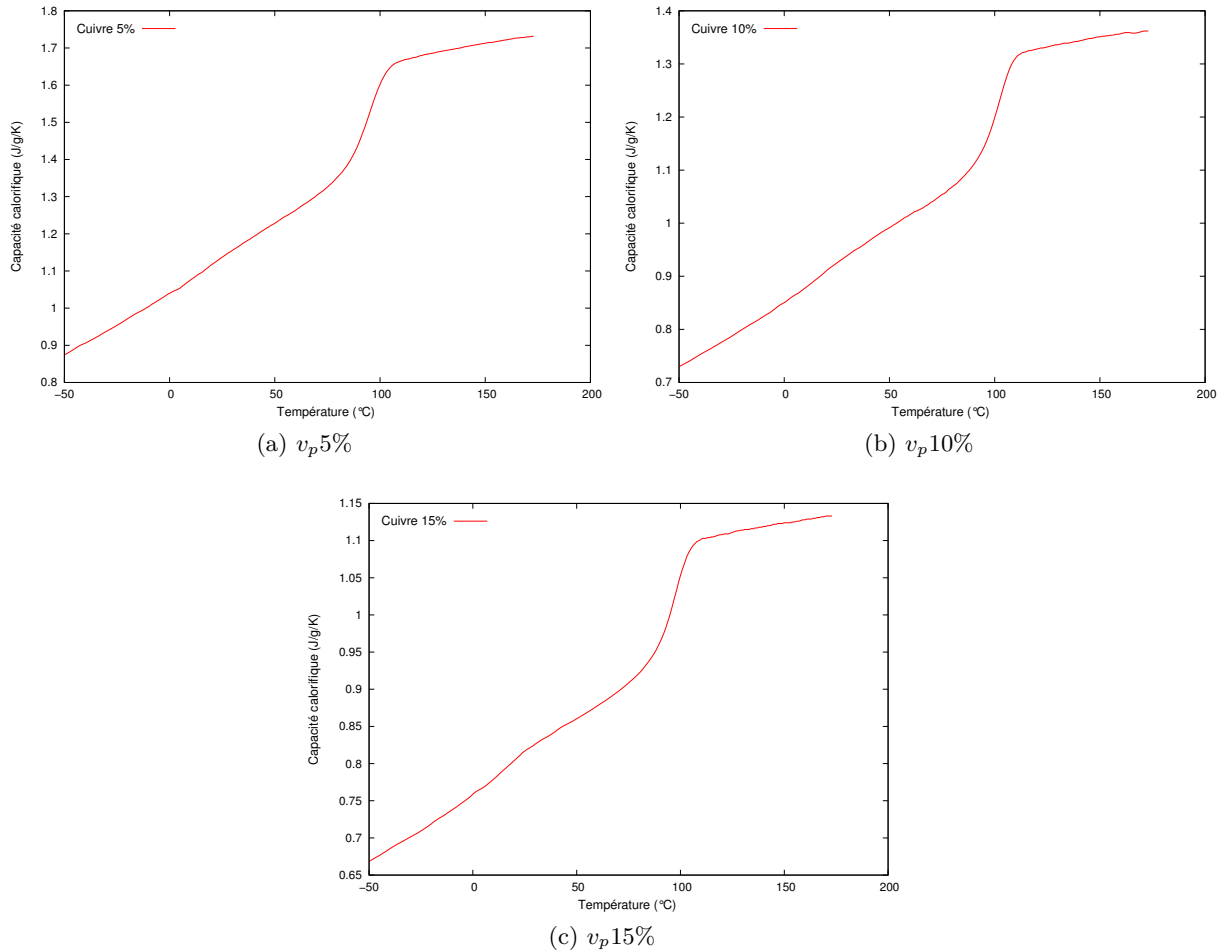


FIGURE 3.10 – Mesure de C_p par DSC sur les échantillons de matrice dopée par des particules de cuivre

3.6.3 Mesure de la masse volumique

La masse volumique des échantillons a été déterminée par l'intermédiaire d'une balance hydrostatique de chez METTLER - TOLEDO (Figure 3.11).

Une balance hydrostatique est basée sur le principe d'Archimède : tout corps plongé dans un liquide en équilibre subit de la part de ce liquide une poussée verticale orientée vers le haut qui est égale au poids du liquide déplacé. Ce principe nous permet de déterminer la masse volumique, ρ_S de nos échantillons.

Le principe de mesure est le suivant. Le solide est dans un premier temps pesé dans l'air. Il est ensuite immergé dans un liquide auxiliaire où il est à nouveau pesé. À partir de ces deux mesures la masse volumique du solide est déduite par l'équation(3.4).

$$\rho_S = \frac{A}{A - B} \rho_0 \quad \text{ou} \quad \rho_S = \frac{A}{P} \rho_0 \quad (3.4)$$

avec A , le poids du solide dans l'air, B , le poids du solide dans le liquide auxiliaire, P , la poussée du liquide auxiliaire sur le solide et ρ_0 , la masse volumique du liquide auxiliaire à une température donnée. En général, nous utilisons de l'eau distillée.

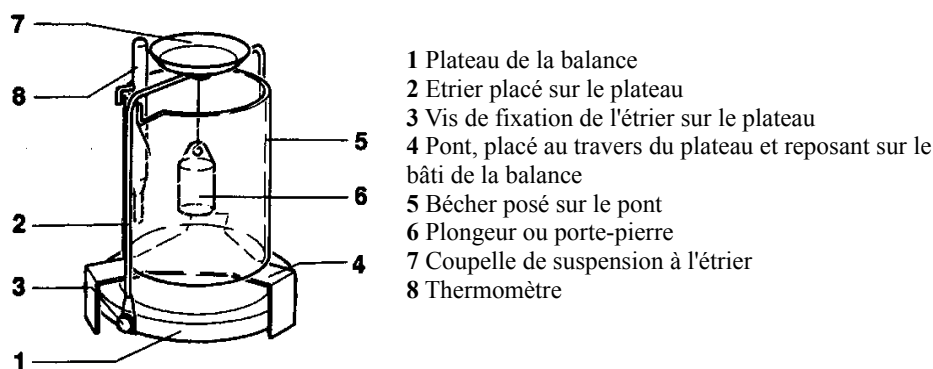


FIGURE 3.11 – Schéma de principe de la balance hydrostatique

En ce qui concerne la précision de cette mesure, elle peut être influencée par différents facteurs et donc certaines précautions doivent être prises. Nous présentons ici ces facteurs et leur influence sur la précision de la mesure :

La température : dans le cas des solides, la variation de la masse volumique due à la température est si faible que la température du solide que nous souhaitons caractériser n'a pas d'importance. Par contre, en ce qui concerne les liquides, la variation de la masse volumique est de l'ordre de 0.1 à 1‰ par °C. Par exemple, dans le cas de l'eau distillée la variation de masse volumique est de l'ordre de 1‰ par 5 °C. La variation de la masse volumique dans les liquides ne peut être négligée dans le cas d'une mesure sur solides, car la masse volumique de notre solide est déterminée par l'intermédiaire d'un liquide auxiliaire dans lequel il est immergé. Ce facteur est à prendre en considération si la précision attendue est supérieure à 1%.

La poussée de l'air : 1 cm³ d'air pèse, suivant son état, de 1 à 1.2 mg. Un solide pesé dans l'air subit donc une poussée de cette valeur par cm³ de son volume. Ce facteur est généralement négligé et n'est à prendre en compte que si nous cherchons une précision de 3 ou 4 chiffre après la virgule. Dans le cas d'une prise en compte de ce facteur il faut apporter une correction de +0.001 g/cm³ à la valeur de la masse volumique du solide ρ_S .

La profondeur d'immersion du porte-pierre : le porte-pierre est composé dans sa partie immersible d'un fil de diamètre 0.8 mm qui subit une poussée d'environ 5 mg/10 mm de longueur immergée (dans le cas d'un liquide ayant une masse volumique proche de 1). Cependant le porte-pierre étant également immergé lors de la pesée dans l'air, la poussée du liquide sur le porte-pierre peut-être considérée comme constante. En effet, le changement de niveau dû à l'immersion du solide est souvent négligeable. Il faut cependant noter qu'un solide de 1 cm³ fait monter le niveau du liquide d'environ 0.5 mm, ce qui provoque une poussée d'environ 0.15 mg soit une erreur sur la valeur de la masse volumique de 0.15 mg/cm³.

La tension superficielle du fil : L'adhésion du liquide sur le fil de suspension crée une augmentation de poids fictive. Il se crée sur le porte-pierre immergé dans l'eau une force pouvant atteindre 3 mg. L'influence sur le résultat est généralement exclue. Néanmoins si

nous recherchons une grande précision il est préférable de réduire la tension superficielle du fil.

Les valeurs de la masse volumique des échantillons sont répertoriées dans le tableau 3.10.

Les valeurs de diffusivité thermique, de chaleur spécifique et de masse volumique étant déterminées, nous pouvons maintenant déduire le coefficient de conductivité thermique de nos échantillons en nous basant sur l'équation(3.1) de la section 3.4. Les données sont récapitulées dans le tableau 3.10.

Particules	$v_p(\%)$	$\rho (g/cm^3)$	$C_p (J/(gK))$	$a(mm^2/s)$	$\lambda (W.m^{-1}.K^{-1})$	
R12.13.03.i1	0	1.110	1.248	0.105	0.145	
	5%	1.185	1.204	0.145	0.207	
Aluminium	10%	1.275	1.271	0.175	0.284	
	15%	1.363	1.267	0.218	0.376	
Cuivre	5%	1.461	1.129	0.189	0.312	
	10%	1.790	0.9194	0.292	0.481	
	15%	2.189	0.8119	0.396	0.704	
LY556 D230	0	1.12	1.228 (± 0.036)	0.140 (± 0.005)	0.207 (± 0.017)	
	5%	1.23	1.295 (± 0.038)	0.178 (± 0.012)	0.270 (± 0.026)	
	Aluminium Z600	15%	1.38	1.161 (± 0.062)	0.270 (± 0.009)	0.380 (± 0.003)
		30%	1.54	1.075 (± 0.021)	0.415 (± 0.005)	0.597 (± 0.004)
		50%	1.77	0.949 (± 0.033)	0.788 (± 0.003)	1.270 (± 0.042)

TABLEAU 3.10 – Mesures de masse volumique, ρ , chaleur spécifique, C_p , diffusivité thermique, a et calculs du coefficient de conductivité thermique, λ , de nos différents échantillons en fonction de la fraction volumique des particules v_p , à 23 ° C

Au regard des résultats obtenus nous pourrions avoir la sensation que l'apport des charges dans la résine n'a pas d'effet spectaculaire sur la valeur du coefficient de conductivité thermique. Cependant à fraction volumique équivalente, par exemple $v_p = 15\%$, les particules d'aluminium du lot ICA permettent une augmentation du coefficient de conductivité thermique de 259% par rapport à la résine pure. Les particules de cuivre quant à elles permettent une augmentation de 486% et les particules d'aluminium Z600 une augmentation de 184%. Même si les valeurs de conductivité thermique restent entre très loin des niveaux attendus dans le cahier des charges, il n'en reste pas moins que les augmentations obtenues sont très positives.

Il s'agit à présent de comparer ces résultats expérimentaux avec les modèles analytiques et numériques que nous avons présentés au chapitre 2.

3.7 Comparaison des valeurs analytiques, numériques et expérimentales

Dans le chapitre 2 nous avons présenté différents modèles analytiques de la littérature ainsi que le développement d'un modèle numérique sous COMSOL MULTIPHYSICS. Ce modèle génère une répartition aléatoire de sphères, représentant les charges dopantes, dans un volume élémentaire représentatif (V.E.R.) cubique, représentant la matrice.

L'analyse des différents modèles analytiques et numériques nous a permis de choisir un modèle analytique corrélant au mieux le modèle numérique. Nous avons ainsi choisi le modèle de Hamilton de par sa facilité de mise en œuvre et sa très bonne corrélation avec le modèle numérique.

Dans un premier temps nous allons comparer nos résultats expérimentaux avec le modèle analytique et dans un second temps avec le modèle numérique.

3.7.1 Comparaison entre modèle analytique et résultats expérimentaux

Le modèle de Hamilton a été présenté dans le chapitre 1 et est défini l'équation(1.11) et dépend d'un paramètre n . Toutefois, nous le redonnons ici pour faciliter la lecture et le développement de l'analyse.

$$\lambda_c = \lambda_m \left[\frac{\lambda_p + (n-1)\lambda_m - (n-1)v_p(\lambda_m - \lambda_p)}{\lambda_p + (n-1)\lambda_m + v_p(\lambda_m - \lambda_p)} \right]$$

Ce paramètre n illustre la sphéricité de la particule et est défini par l'équation(3.7.1).

$$n = \frac{3}{\psi}$$

$$\psi = \frac{\text{Surface sphère ayant un même volume que la particule}}{\text{Surface particule}} \quad (3.5)$$

La figure 3.12 compare les résultats expérimentaux présentés dans la section 3.6 avec le modèle de Hamilton dans le cas de particules sphériques ($n = 3$).

Comme nous pouvons le constater sur la figure 3.12a représentant les résultats obtenus avec les particules d'aluminium Z600, le modèle de Hamilton corrèle assez bien les résultats expérimentaux jusqu'à une fraction volumique $v_p = 30\%$. Au delà les deux courbes divergent. Par contre, dans le cas des particules d'aluminium et des particules de cuivre du lot ICA, le modèle de Hamilton ne corrèle absolument pas les résultats expérimentaux.

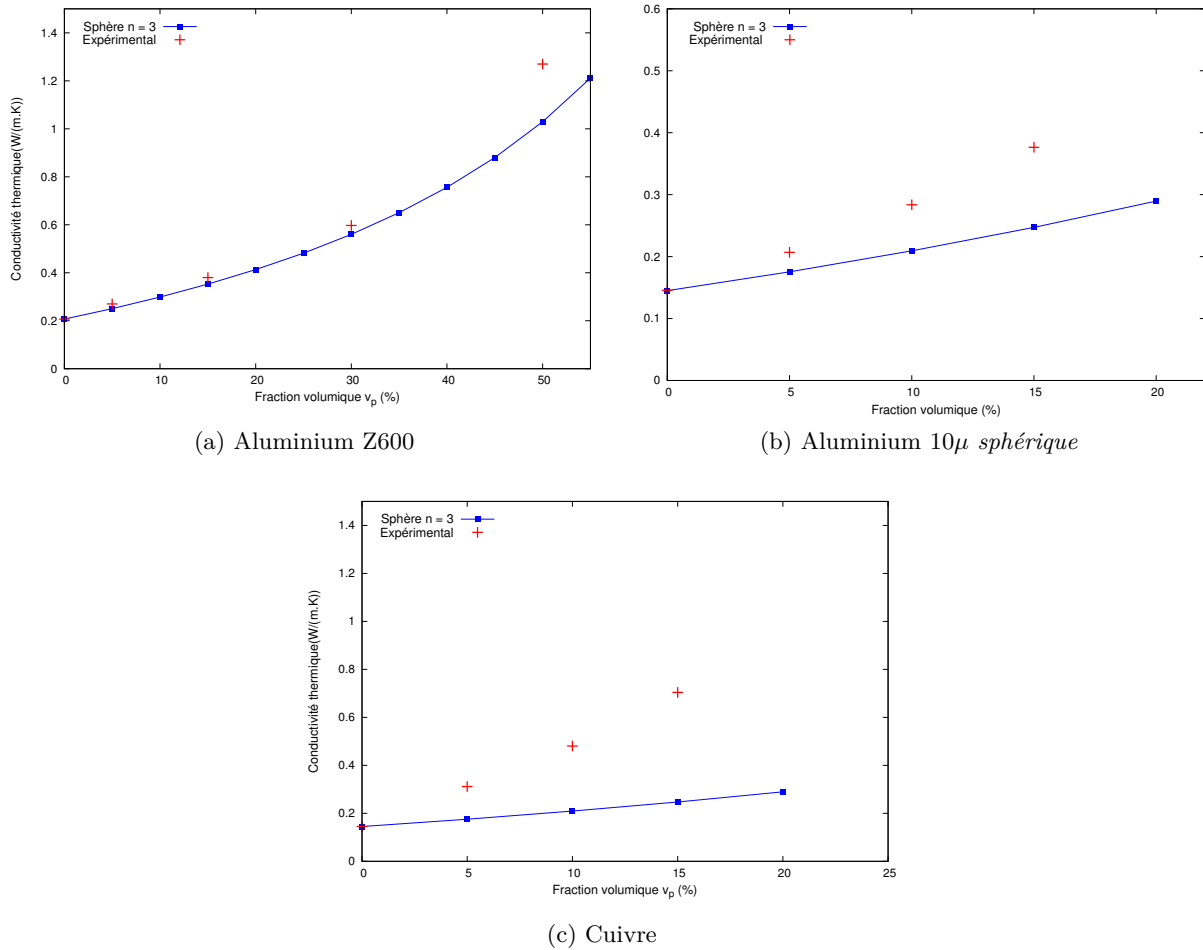


FIGURE 3.12 – Comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle de Hamilton dans le cas de particules sphériques ($n = 3$)

Or comme nous l'avons observé dans la section 3.5 les particules qui nous ont été fournies ne sont pas toutes de formes sphériques. Nous avons donc été amenés à étudier l'influence du paramètre n sur le modèle de Hamilton. Pour cela nous avons choisi des géométries basiques plus ou moins proches des géométries des particules réelles employées.

Dans un premier temps, nous considérons que nous "enfermons" toutes les particules dans des sphères. Le rayon de ces sphères est défini par un rayon moyen, r_{moy} , qui s'appuie sur le d_{50} des particules :

- aluminium Z600 (lot RESCOLL), $d_{50} = 6.484 \mu m$ soit $r_{moy} = 3.5 \mu m$
- aluminium 10 μ sphérique (lot ICA), $d_{50} = 9.752 \mu m$ soit $r_{moy} = 4.9 \mu m$
- cuivre (lot ICA), $d_{50} = 10.3 \mu m$ soit $r_{moy} = 5 \mu m$

Comme nous l'avons observé sur les figures 3.6b et 3.12c, dans le cas des particules de cuivre, le modèle de Hamilton ne corrèle pas les résultats expérimentaux. En effet, la forme des particules est proche de celle d'une aiguille.

Nous nous sommes donc intéressés à d'autres géométries telles que le disque ou l'ellipsoïde. En effet, en jouant sur les dimensions de ces géométries nous pouvons approcher les géométries réelles des particules. Les géométries considérées n'étant plus celles d'une sphère, nous allons devoir

définir la valeur du paramètre n et par conséquent la valeur de la sphéricité, ψ , des particules. En définissant une sphère de rayon proche du d_{50} de nos particules nous nous sommes intéressés à des particules de forme cylindrique ou ellipsoïdale. En effet, la géométrie de nos particules peut être considérée comme proche de ces géométries.

La principale difficulté que nous allons rencontrer pour déterminer les valeurs de sphéricité, ψ de nos particules est la détermination de la surface de ces particules. En effet, si nous considérons que la géométrie de notre particule peut être assimilée à un disque, la définition de la surface sera simple. Par contre, si nous assimilons la géométrie à un ellipsoïde, la définition de la surface est plus complexe.

La figure 3.13 montre la définition géométrique d'un ellipsoïde modèle. L'équation(3.6) définit l'aire véritable d'un ellipsoïde, S .

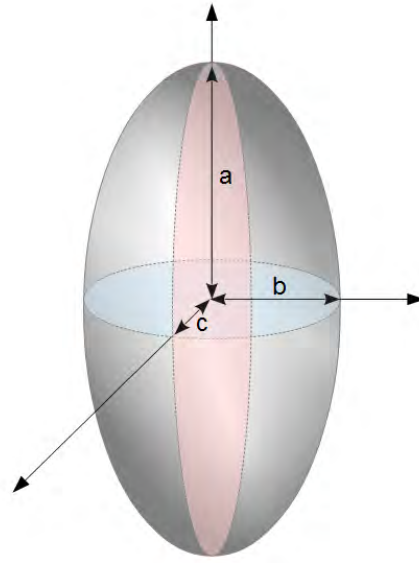


FIGURE 3.13 – Définition géométrique d'un ellipsoïde modèle

$$\begin{aligned}
 S &= \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \sin(\theta) \sqrt{b^2 c^2 \sin^2(\theta) \cos^2(\phi) + a^2 c^2 \sin^2(\theta) \sin^2(\phi) + a^2 b^2 \cos^2(\theta)} d\theta d\phi \\
 &= 2\pi \left(c^2 + \frac{bc^2}{\sqrt{a^2 - c^2}} F(\theta, m) + b\sqrt{a^2 - c^2} E(\theta, m) \right) \quad (3.6)
 \end{aligned}$$

$$\text{avec } m = \frac{a^2(b^2 - c^2)}{b^2(a^2 - c^2)} \quad \text{et} \quad \theta = \arcsin \left(\sqrt{1 - \frac{c^2}{a^2}} \right); \quad a \geq b \geq c$$

où θ et ϕ décrivent un système de coordonnées sphériques et où $E(\theta, m)$ et $F(\theta, m)$ sont les intégrales elliptiques incomplètes de première et seconde espèces définies par :

$$F(\theta, m) = \int_0^\theta \frac{1}{\sqrt{1 - m^2 \sin^2(\alpha)}} d\alpha \quad \text{et} \quad E(\theta, m) = \int_0^\theta \sqrt{1 - m^2 \sin^2(\alpha)} d\alpha$$

Le calcul de la surface d'un ellipsoïde en utilisant cette relation devient très vite complexe et long, car il fait intervenir de multiples intégrales de termes trigonométriques.

Heureusement il existe des relations plus légères en termes de formulation permettant d'exprimer la surface d'un ellipsoïde. Trois cas bien précis existent : les ellipsoïdes allongés ($b = c$), aplatis ($a = b$) ou "dégénérés" ($c = 0$).

$$\text{Si } a = b, \quad S = 2\pi \left[a^2 + c^2 \tanh^{-1}(e)/e \right] \quad (3.7)$$

$$\text{Si } b = c, \quad S = 2\pi \left[c^2 + ac \arcsin(e)/e \right] \quad (3.8)$$

$$\text{Si } c = 0, \quad S = 2\pi ab \quad (3.9)$$

$$\text{avec } e = \sqrt{1 - \frac{c^2}{a^2}} \quad (3.10)$$

Cependant si nous voulons déterminer la surface d'un ellipsoïde d'équation $(x/a)^2 + (y/b)^2 + (z/c)^2 = 1$, avec $a > b > c$, sans résoudre l'équation(3.6) nous pouvons utiliser l'approximation de *Knud Thomsen*¹ [77] exprimée par l'équation(3.11).

$$S = 4\pi [(a^p b^p + a^p c^p + b^p c^p) / 3]^{1/p} \quad (3.11)$$

avec p qui est une constante. Cette approximation a une faible erreur relative (de l'ordre de $\pm 1.061\%$ dans le pire des cas) pour $p = 1.6075$ [77].

Les tableaux 3.11, 3.12 et 3.13 répertorient les valeurs de a , b et c que nous avons choisies de tester pour définir la sphéricité, ψ , du modèle de Hamilton. Pour chaque tableau nous retrouvons trois ou quatre cas d'ellipsoïdes et un cas de cylindre. Dans le cas des ellipsoïdes, trois cas sont représentés : les ellipsoïdes allongés ($b = c$), aplatis ($a = b$) et quelconque. Les dimensions des ellipsoïdes a , b et c ont été choisies afin de répondre à la définition, donnée par Hamilton [11], de la sphéricité (équation(3.5), p. 107). Précédemment, nous avons défini le rayon moyen, r_{moy} , des particules en accord avec leur $d50$ ($r_{moyZ600} = 3.5 \mu m$, $r_{moy10\mu} = 4.9 \mu m$, $r_{moyCu} = 5 \mu m$). Les dimensions a , b et c ont donc été choisies de manière à ce que le volume de l'ellipsoïde de dimensions a , b et c soit le même que le volume de la sphère de rayon moyen, r_{moy} . Une fois les dimensions déterminées, le calcul des surfaces de la sphère et de l'ellipsoïde (équation(3.7) à équation(3.11)) permet de calculer la sphéricité de la particule et d'en déduire la valeur du paramètre n .

La figure 3.14 compare les valeurs du modèle de Hamilton obtenues pour différentes géométries d'ellipsoïdes avec les résultats expérimentaux de résine chargée de particules d'aluminium Z600. Nous constatons ainsi que, quand le paramètre n , qui reflète la sphéricité de nos particules, est compris entre 3.382 et 3.620, le modèle de Hamilton corrèle au plus près les résultats expérimentaux jusqu'à une fraction volumique $v_p = 30\%$. Cela signifierait que la géométrie de nos particules serait une sphère légèrement aplatie.

1. <http://nbarth.net/notes/src/notes-calc-raw/others/X-numericana/ellipsoid.htm>

	Ellipsoïde				Disque
a (μm)	10.719	7.146	4.141	4.630	-
b (μm)	2	3	4.141	4.630	-
c (μm)	2	2	2	2	-
e (μm) (<i>éq.</i> (3.10))	0.9824	-	0.7972	0.9019	-
R_c (μm)	-	-	-	-	5.346
H_c (μm)	-	-	-	-	2
S (μm^2)	204.24	185.74	182.11	173.55	246.78
ψ (<i>éq.</i> (3.5))	0.754	0.829	0.845	0.8870	0.624
n (<i>éq.</i> (3.7.1))	3.980	3.620	3.549	3.382	4.810

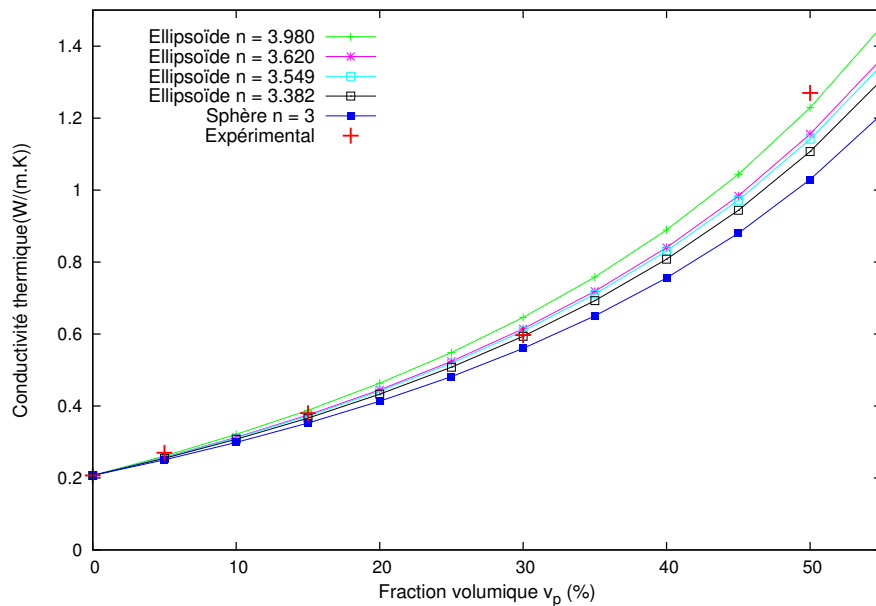
 TABLEAU 3.11 – Valeurs des paramètres déterminant la valeur de n pour $r_{moy} = 3.5 \mu m$

	Ellipsoïde			Disque
a (μm)	11.205	29.412	11.433	-
b (μm)	3.5	2	11.433	-
c (μm)	3	2	0.9	-
e (μm) (<i>éq.</i> (3.10))	-	0.9977	0.9969	-
R_c (μm)	-	-	-	8.856
H_c (μm)	-	-	-	2
S (μm^2)	371.01	602.59	828.06	604.10
ψ (<i>éq.</i> (3.5))	0.813	0.501	0.364	0.499
n (<i>éq.</i> (3.7.1))	3.689	5.992	8.233	6.006

 TABLEAU 3.12 – Valeurs des paramètres déterminant la valeur de n pour $r_{moy} = 4.9 \mu m$

La figure 3.15 compare les valeurs du modèle de Hamilton obtenues aux résultats expérimentaux de résine chargée de particules d'aluminium 10μ *sphérique*. Dans ce cas-ci, le paramètre n

	Ellipsoïde			Disque
a (μm)	62.5	31.25	18.899	-
b (μm)	2	2	18.899	-
c (μm)	1	2	0.35	-
e (μm) (<i>éq.</i> (3.10))	-	0.9979	0.9998	-
R_c (μm)	-	-	-	9.129
H_c (μm)	-	-	-	2
S (μm^2)	946.78	618.05	2243.99	638.31
ψ (<i>éq.</i> (3.5))	0.332	0.508	0.140	0.492
n (<i>éq.</i> (3.7.1))	9.041	5.902	21.428	6.095

 TABLEAU 3.13 – Valeurs des paramètres déterminant la valeur de n pour $r_{moy} = 5 \mu m$

 FIGURE 3.14 – Influence du facteur n du modèle de Hamilton comparé aux résultats expérimentaux sur les particules d'aluminium Z600

est proche d'une valeur de 8. Cela correspondrait à une géométrie de particule proche de celle d'un flocon. La Figure 3.16 montre des particules de graphite dont la forme peut être assimilée à celle d'un flocon.

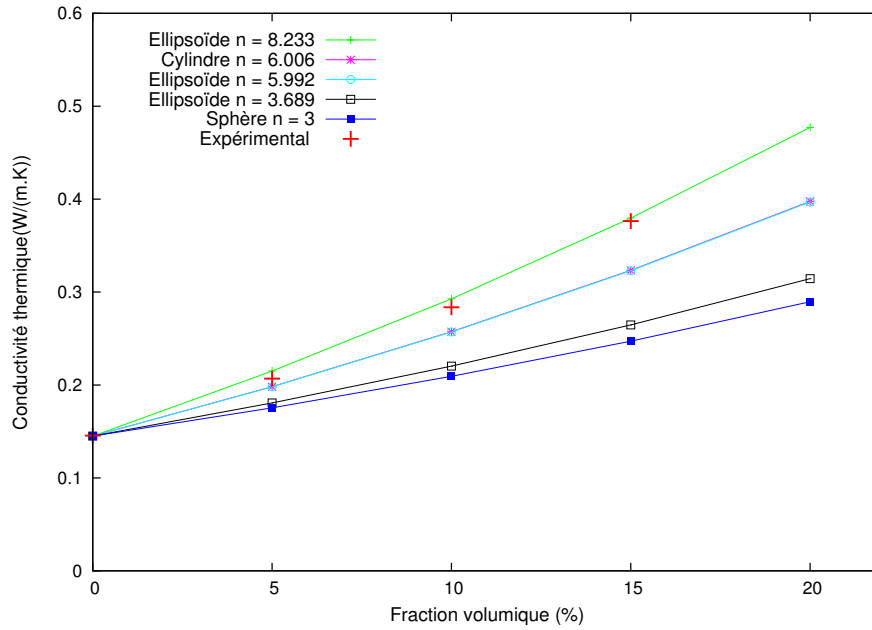


FIGURE 3.15 – Influence du facteur n du modèle de Hamilton comparé aux résultats expérimentaux sur les particules d'aluminium 10μ sphérique

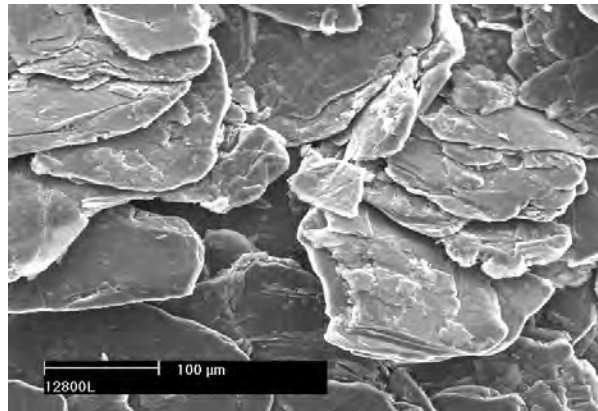


FIGURE 3.16 – Exemple de particules de graphite

Enfin la figure 3.17 compare les valeurs du modèle de Hamilton obtenues aux résultats expérimentaux de résine chargée de particules de cuivre. Ici nous observons que le paramètre n le plus adapté est de l'ordre de 21.4. Cela correspondrait à une géométrie de particule proche de celle d'une aiguille.

Par rapport aux deux cas précédents nous nous retrouvons ici avec une géométrie de particules difficile à comparer avec la géométrie des particules de cuivre. En effet, nous avons pu observer que ces particules sont de forme dendritique. Cependant nous pouvons considérer que la forme des branches des dendrites est assimilable à celle d'une aiguille. Cela reste donc cohérent avec notre raisonnement.

Nous pouvons noter que le modèle de Hamilton peut prendre en compte différentes géométries de type ellipsoïdales. Il nous faut cependant nuancer nos résultats. En effet, le modèle de Hamilton ne considère qu'une taille moyenne de particule et de ce fait ne considère qu'une seule

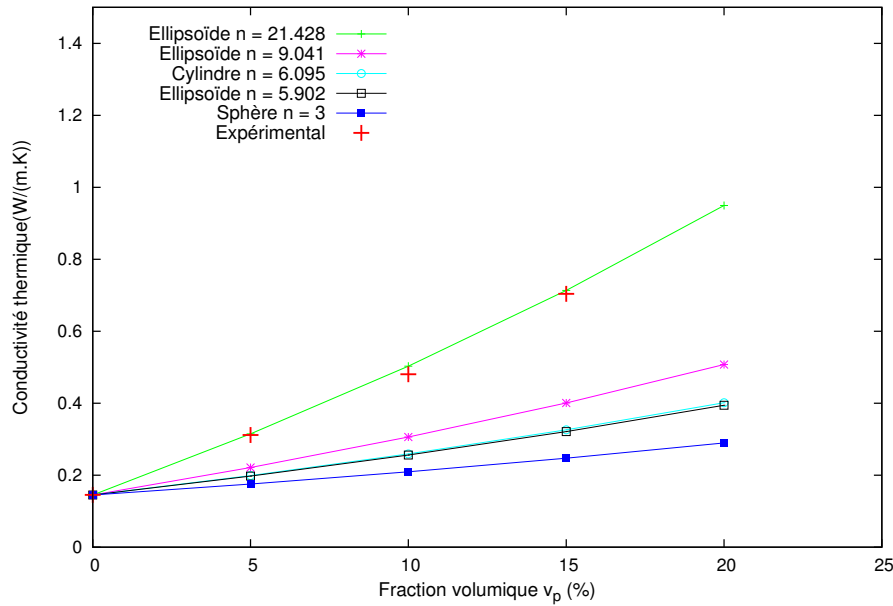


FIGURE 3.17 – Influence du facteur n du modèle de Hamilton comparé aux résultats expérimentaux sur les particules de cuivre

valeur pour la surface de la particule. Or nous avons constaté que les particules que nous ajoutons ont une distribution de tailles répondant à une gaussienne (cf. Annexe E). De plus, la mise en œuvre des échantillons peut également influencer la distribution spatiale des particules dans le volume de matrice organique. Par exemple, pour les échantillons chargés de particules d'aluminium Z600, nous avons constaté une sédimentation de ces particules dans la résine pour des fractions volumiques $v_p = 5\%$ et 15% (Figure 3.4). Cette sédimentation a modifié la répartition des particules dans la résine et par conséquent la fraction volumique locale dans l'échantillon. La mise en œuvre peut aussi engendrer la formation d'agglomérats ou au contraire entraîner la fragmentation des particules.

Nous n'avons pas trouvé à ce jour de modèles analytiques dans la littérature prenant en compte les variations de géométrie et de taille dans les particules. Cependant le modèle de Hamilton semble permettre de faire une première estimation de la valeur du coefficient de conductivité thermique pour des fractions volumiques $v_p < 30\%$. Dans notre cas cette limitation n'en est pas réellement une car la matrice chargée doit être injectée dans un renfort fibreux plus ou moins dense ayant une fraction volumique v_f de l'ordre de 45 à 55%. Une fraction volumique de particules supérieure à cette limitation empêche l'imprégnation des renforts et crée une importante filtration des particules, mais rappelons-le, cette question est hors du périmètre de ces travaux de thèse.

3.7.2 Comparaison entre modèle numérique et résultats expérimentaux

La figure 3.18 compare les résultats expérimentaux des échantillons chargés de particules d'aluminium Z600 avec le modèle de répartition aléatoire de sphères développé sous COMSOL

MULTIPHYSICS. Les différents paramètres choisis pour ce modèle, suite à l'étude de sensibilité du chapitre 2, sont les suivants :

- V.E.R. cubique de côté $L = 50 \mu m$
- rayon moyen des particules : $r_{moy} = 3 \mu m$
- conditions aux limites : $T_0 = 0 K$, $\phi_S = 1000 W.m^{-1}.K^{-1}$
- maillage : un volume moyen par élément de l'ordre de $1 \mu m^3$
- fraction volumique des particules : $v_p = 3, 5, 10, 15, 20 \%$

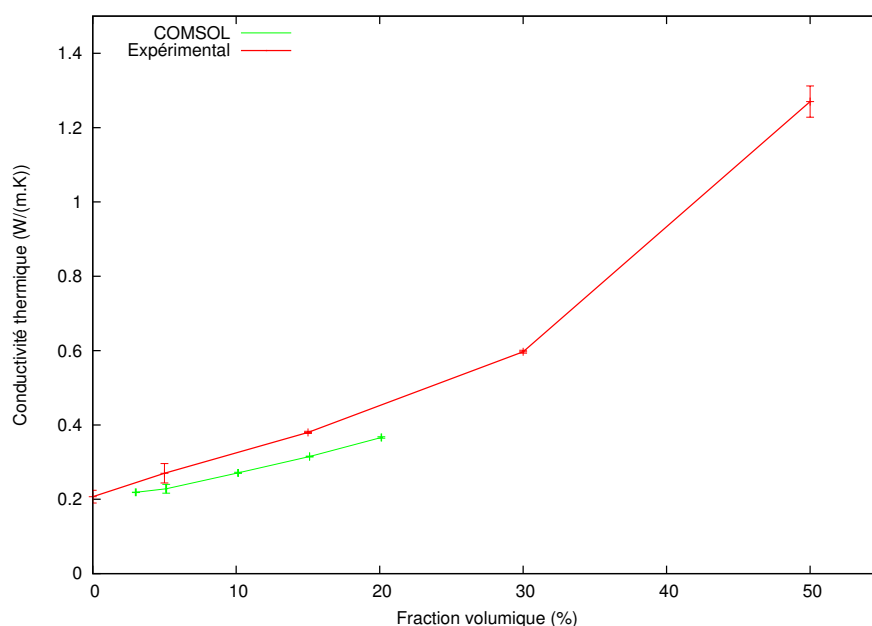


FIGURE 3.18 – Comparaison des résultats numériques et expérimentaux

Comme nous pouvons le remarquer le modèle numérique sous-estime les résultats expérimentaux.

La génération du modèle est basée sur un rayon moyen de sphère. Toutes les sphères étant identiques, la granulométrie des particules n'est pas prise en compte. Or lors du développement du modèle nous avons fait une étude de sensibilité (chapitre 2 p. 57) de ce modèle. Un des paramètres étudié était le rayon des sphères. Nous avons conclu que le rayon des particules n'avait pas d'influence sur la valeur du coefficient de conductivité thermique. Il faudrait cependant voir à remplacer le rayon moyen des particules par une fonction gaussienne représentative de la répartition des différentes tailles de particules telle que définie par la granulométrie. Cela permettra d'étudier l'influence des interactions entre particules sur les transferts thermiques mais la gestion des interférences entre particules est plus complexe à implémenter.

L'autre hypothèse qui pourrait expliquer cette divergence est la géométrie des particules elle-même. En effet, nous pourrions voir ici l'effet de l'éloignement de la vraie forme des particules par rapport aux sphères parfaites. Malheureusement le programme permettant une génération aléatoire de particules ellipsoïdales n'est pas encore assez abouti pour permettre une comparaison avec des résultats expérimentaux.

Enfin, nous avons considéré une interface particules/matrice parfaite. En effet, au vue de la sous-estimation des résultats de simulation par rapport aux résultats expérimentaux, cela paraissait aberrant d'ajouter une résistance thermique de contact qui diminuerait d'autant la valeur de la conductivité thermique.

3.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les différents constituants, charges métalliques et matrices polymères, utilisés dans la fabrication de nos échantillons. Nous avons également analysé la répartition de différents types de particules dans la matrice. Puis, des mesures expérimentales ont été conduites afin de déterminer le coefficient de conductivité thermique de nos échantillons. Sur les trois charges testées, les particules de cuivre sont celles qui ont donné, à taux volumique équivalent, la plus grande augmentation de conductivité thermique. En effet, pour une fraction volumique de particules de 15% , les particules d'aluminium Z600 ont permis une augmentation du coefficient de conductivité thermique de 184% par rapport au coefficient de conductivité thermique de la matrice. Les particules d'aluminium 10μ *sphérique* ont elles apporté une augmentation de 259% et enfin les particules de cuivre électrolytique donnent une augmentation de 486% par rapport au coefficient de conductivité thermique de la matrice.

La comparaison des résultats expérimentaux avec les modèles analytiques et numériques a permis de mettre en évidence l'influence forte de la forme des particules sur l'amélioration de la conductivité thermique d'une matrice époxy. En effet, nous avons remarqué que les valeurs des coefficients de conductivité thermique des échantillons chargés de particules d'aluminium n'étant pas les mêmes en fonction du type de particules (Z600 ou 10μ *sphérique*), l'influence de la forme, des agglomérats mais également de la granulométrie sont mis en évidence. Notamment pour la granulométrie, où le d_{50} des particules Z600 est environ 1/3 plus petit que celui des particules 10μ *sphérique* ($d_{50Z600} = 6.484\ \mu m$, $d_{5010\mu} = 9.752\ \mu m$) où pour une fraction volumique de particules de 15%, par exemple, la différence d'augmentation entre les deux grades est de 74%. Effectivement nous rappelons - pour $v_p = 15\%$, fraction volumique de particules - que $\lambda_{Z600} = 0.380\ W.m^{-1}.K^{-1}$ (pour une conductivité thermique de la matrice pure de : $0.207\ W.m^{-1}.K^{-1}$) tandis qu'avec les particules 10μ *sphérique*, la conductivité thermique atteint : 0.376 (pour une conductivité thermique de la matrice pure de : $0.145\ W.m^{-1}.K^{-1}$).

À côté des résultats expérimentaux, notre tâche principale dans le projet THEOREM, portait sur la simulation à partir de modèles analytiques puis de modèles numériques de la conductivité thermique des matrices polymères dopées et des composites à renforts fibreux (qui seront traités au chapitre 4).

Différents modèles analytiques de la littérature ont été confrontés aux résultats expérimentaux (provenant de la société RESCOLL et de nos propres mesures). Cela a permis de mettre en évidence l'importance du facteur de forme des particules et donc de montrer que seuls les modèles prenant en compte ce paramètre donnaient les meilleurs résultats en termes de proximité avec les valeurs expérimentales.

Du point de vue numérique, les paramètres matériau d'entrée du modèle de V.E.R. cubique avec distribution aléatoire de particules sphériques ont été modifiés de façon à correspondre aux données expérimentales : fraction volumique de particules, $v_p\%$, dimensions des particules, conductivité thermique de la matrice et des particules. Avec de tels paramètres matériau d'entrée, il apparaît que la simulation fournit des valeurs de conductivité thermique inférieures de 0.4% (pour une fraction volumique de 5%), ou 17% (pour une fraction volumique de 15%) aux valeurs expérimentales obtenues avec des particules d'aluminium TOYAL Z600 et 10μ sphérique.

Les origines possibles de cette sous-estimation de conductivité thermique par le modèle numérique pourraient être :

- la valeur de la conductivité thermique des particules d'aluminium qui serait incorrecte. En effet, nous avons considéré que les particules d'aluminium ont la même conductivité thermique que l'aluminium pur (valeur de Goodfellow et de Matweb).
- d'un point de vue expérimental, les valeurs de conductivité thermique pour des fractions volumiques de particules de 5% et 15% sont certainement modifiées par les effets de sédimentation observés.

Chapitre 4

Renforts textiles et composites

Sommaire

4.1	Introduction	120
4.2	Renforts textiles unidirectionnels	120
4.2.1	Introduction	120
4.2.2	Conductivité thermique longitudinale	121
4.2.3	Conductivité thermique transverse	127
4.2.3.1	Expérimental	127
	Fraction volumique réelle de fibres	128
	Diffusivité thermique	128
	Chaleur spécifique	129
	Coefficient de conductivité thermique transverse	129
4.2.3.2	Modèle numérique	129
4.3	Renforts textiles 2D	132
4.3.1	Constituants	132
4.3.2	Procédé de mise en forme	135
4.3.3	Caractérisation thermique	137
4.3.3.1	Fraction volumique réelle de fibres	138
4.3.3.2	Diffusivité thermique	138
4.3.3.3	Chaleur spécifique	139
4.3.3.4	Coefficient de conductivité thermique transverse	139
4.3.4	Modélisation numérique	140
4.3.4.1	Géométrie de la mèche	142
	Section rectangulaire	142
	Section demi cercles/rectangle	142
4.3.4.2	Fraction volumique de fibres	144
	Fraction volumique de fibres dans les mèches = 100%	144
	Fraction volumique de fibres dans les mèches < 100%	146
4.3.4.3	Cas de la matrice chargée de particules de cuivre	148
4.4	Conclusion	149

4.1 Introduction

DANS un matériau composite constitué d'une matrice époxyde et renforcé de fibres longues de carbone, la conductivité thermique est généralement faible à cause des propriétés isolantes de la matrice. Il est ainsi évident que ce sont les fibres de carbone qui assurent la totalité du transfert thermique.

Afin d'améliorer les caractéristiques thermiques de la matrice, nous avons, dans les chapitres précédents, développé des modèles permettant de caractériser le comportement thermique d'une matrice chargée de particules dopantes.

Nous cherchons dans ce chapitre à caractériser le comportement thermique d'architectures classiques de renforts textiles imprégnées de matrice non chargée ou de matrice dopée.

Dans un premier temps, nous allons étudier le comportement thermique de renforts textiles unidirectionnels. Nous avons donc développé un modèle numérique permettant de déterminer la conductivité thermique longitudinale d'un renfort UD, que nous avons comparé au modèle analytique présenté au chapitre 1, p. 28. Nous avons également développé un modèle déterminant la conductivité thermique transverse d'un renfort UD que nous avons comparé aux différents modèles analytiques présentés au chapitre 1, ainsi qu'aux résultats expérimentaux que nous allons présenter par la suite. Dans un second temps, nous aborderons le comportement de renforts textiles 2D d'un point de vue numérique et expérimental et nous les comparerons également aux modèles analytiques présentés au chapitre 1.

4.2 Renforts textiles unidirectionnels

4.2.1 Introduction

Les modèles analytiques présentés au chapitre 1, traitant des renforts unidirectionnels (UD), considèrent généralement comme V.E.R. une fibre isotrope transverse de section circulaire entourée de résine (Figure 4.1).

Nous nous sommes donc appuyés sur cette définition pour créer nos V.E.R. à l'aide de COMSOL MULTIPHYSICS. Les valeurs des coefficients de conductivité thermique ainsi obtenues ont été comparées aux modèles analytiques présentés dans le chapitre 1.

Dans un premier temps nous allons aborder les modèles traitant de la conductivité thermique longitudinale, puis dans un second temps ceux traitant de la conductivité thermique transverse.

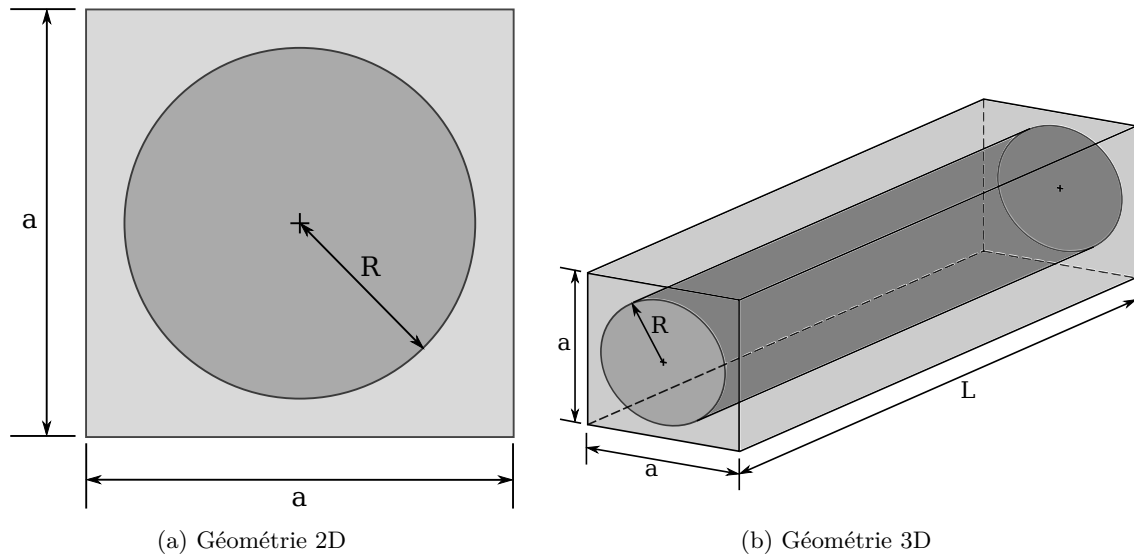


FIGURE 4.1 – Modélisation d'une fibre isotrope transverse de section circulaire

4.2.2 Conductivité thermique longitudinale

Nous n'avons pas les moyens expérimentaux de mesurer la conductivité thermique longitudinale des composites UD, nous ne ferons donc pas de confrontation théorie expérience. De même, nous n'avons pas trouvé, dans la littérature, de valeurs expérimentales pour des composites UD en fibres de carbone et avec les mêmes conditions aux limites en température.

Nous avons donc réduit le modèle à un V.E.R. simple constitué d'une fibre isotrope transverse de section circulaire entourée de matrice. Le V.E.R. a été étudié via deux modèles numériques 2D et 3D tels que définis figure 4.2.

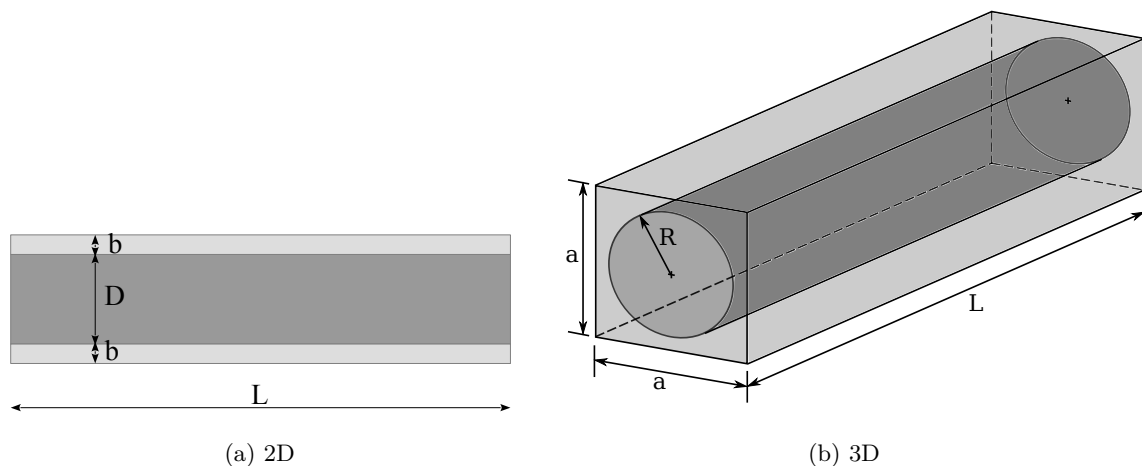


FIGURE 4.2 – V.E.R. dans le cas de la caractérisation de la conductivité thermique longitudinale de renforts UD

Dans COMSOL MULTIPHYSICS, la simulation du transfert de chaleur est basée sur l'équation de Fourier telle que définie par l'équation(2.2) page 56 chapitre 2.

En accord avec la figure 4.2 et l'équation(2.2), le coefficient de conductivité thermique longitudinal s'exprime :

$$\lambda_l = \frac{\phi_S L}{\Delta T} \quad (4.1)$$

Afin de pouvoir déterminer de manière simple la conductivité thermique longitudinale effective du composite, nous avons défini des conditions aux limites qui ne sont pas représentatives de l'environnement futur de notre matériau mais permettent de simplifier le gradient de température et de faciliter la résolution de l'équation de Fourier. Ainsi nous avons imposé (Figure 4.3) :

- une température initiale sur une face : $T_0 = 0 \text{ K}$;
- une densité de flux de chaleur sur la face opposée : $\phi_S = 100 \text{ W.m}^{-2}$.

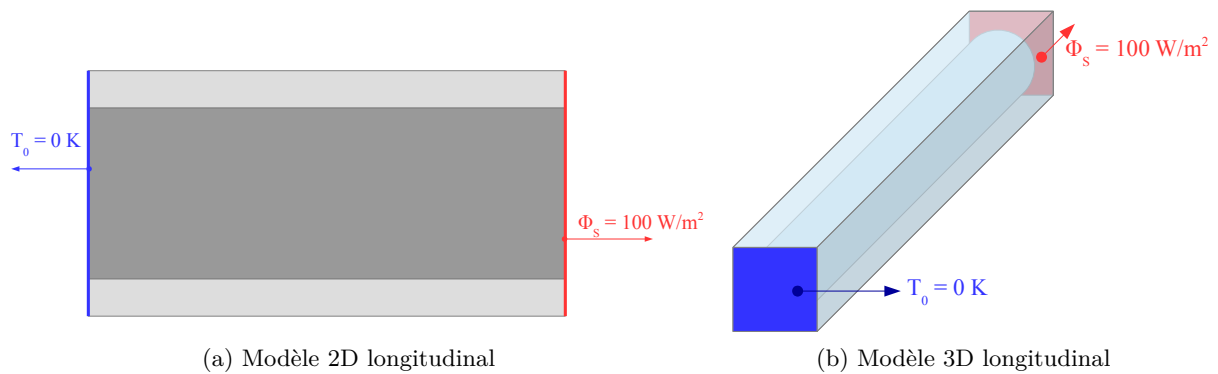


FIGURE 4.3 – Conditions aux limites appliquées sur le modèle longitudinal

Les paramètres géométriques des modèles sont les suivants :

- diamètre des fibres : $D = 7 \mu\text{m}$;
- épaisseur des couches de résine : $b = 1, 2, 3, 4 \mu\text{m}$ ($v_f = 77.77, 64.64, 53.85, 46.67\%$) ;
- longueur de la fibre : $L = 1, 2, 10, 20 \text{ mm}$.

Nous avons fait une étude paramétrique sur les valeurs d'épaisseur des couches de résine, b , et de longueur de fibre, L afin de voir l'influence de la fraction volumique de fibres sur le coefficient de conductivité thermique ainsi que les limites de validité de ce modèle (Tableau 4.2).

De plus, nous mettons en évidence la différence d'échelle entre le diamètre des fibres et leur longueur. En effet, pour que ce modèle soit considéré valide il faut que la longueur des fibres soit très grande devant leur diamètre ($L \gg D$).

Enfin nous définissons les paramètres matériaux. Pour cela nous devons définir quel type de fibres nous allons utiliser. En effet, dans le cas des fibres de carbone nous retrouvons deux grandes familles :

- les fibres de type PAN (précurseur polyacrylonitrile) ;
- les fibres de type PITCH.

Le tableau 4.1 montre un exemple de valeurs du coefficient de conductivité thermique longitudinale de fibres PAN et PITCH, λ_{fl} , relevées dans les documents techniques fournis par différents producteurs.

Nous constatons ainsi, que les fibres PITCH sont bien meilleures conductrices que les fibres PAN. Il peut ainsi y avoir un facteur 6 à un facteur 60 sur la valeur du coefficient de conductivité

Type	Référence	Fabricant	λ_{fl} ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	ρ ($kg.m^{-3}$)	Yamane [78] ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
PAN	T300	TORAY (Soficar France)	10	1760	4.5
	M60 J	TORAY (Soficar France)	152	1940	145
	T800	-	-	-	12
	M40J	-	-	-	45
PITCH	P 120 S	CYTEC	640	2180	
	YS 95 A	Nippon Graphite Fibre Corp.	600	2190	
	CN90	Nippon Graphite Fibre Corp.	500	2190	

TABLEAU 4.1 – Caractéristiques thermiques de quelques fibres de carbone

thermique longitudinale (dans l'axe des fibres) entre les deux types de fibres. Cependant, la littérature et les données fabricants montrent la fragilité des fibres PITCH et leur très faible niveau d'allongement à la rupture (généralement inférieur à 0.5%) et leur rigidité très élevée (de l'ordre de 800 GPa). Nous pouvons donc prévoir des difficultés de réalisation (tissage) des structures textiles avec ces fibres. Toutefois, c'est le côté conductivité thermique qui prédomine et justifie leur choix. Nous avons ainsi posé les paramètres matériaux suivants :

- un coefficient de conductivité thermique longitudinal des fibres : $\lambda_{fl} = 500 W.m^{-1}.K^{-1}$. (Tableau 4.1) ;
- un coefficient de conductivité thermique transverse des fibres : dans la littérature il est souvent supposé que le coefficient de conductivité thermique transverse est 1/10 à 1/100 de fois le coefficient de conductivité thermique longitudinal [46, 52]. Ici, nous avons décidé de prendre 1/100 de fois la valeur du coefficient de conductivité thermique longitudinale, soit $\lambda_{ft} = 5 W.m^{-1}.K^{-1}$.
- un coefficient de conductivité thermique de la résine : $\lambda_r = 0.2 W.m^{-1}.K^{-1}$ (valeur mesurée pour la résine époxy chapitre 3 tableau 3.10 page 106).

La figure 4.4 montre un exemple de la distribution de température du modèle longitudinal dans le cas $b = 4 \mu m$, $L = 2 mm$.

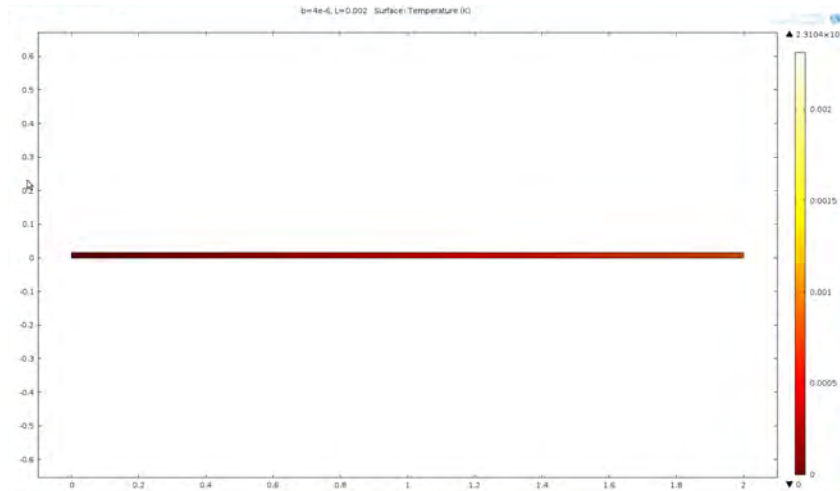


FIGURE 4.4 – Exemple de la distribution de température du modèle longitudinal dans le cas $b = 4 \mu m$, $L = 2 mm$

Le tableau 4.2 récapitule les résultats obtenus pour les modèles 2D et 3D.

Dans le cas du modèle 3D, nous n'avons pas pu aller au-delà de $L = 1 mm$. En effet, du fait des grandes différences entre D et L (quelques μm contre plusieurs dizaines de mm), le maillage du modèle tridimensionnel sur COMSOL a posé de nombreux problèmes avec des éléments tétraédriques. Et nous n'avons pas eu l'opportunité de le faire avec d'autres logiciels. Nous pouvons également constater que le modèle 3D sous-estime la valeur du coefficient de conductivité thermique longitudinal par rapport à celle du modèle 2D. De plus, plus la longueur des fibres augmente, c'est-à-dire plus le rapport D/L diminue, plus les valeurs du coefficient de conductivité thermique longitudinal augmentent. Dans la littérature, le coefficient de conductivité thermique longitudinal est généralement déterminé par la loi des mélanges (cf. chapitre 1). Nous avons donc comparé les différents résultats obtenus numériquement avec ceux obtenus par la loi des mélanges (équation(1.6) page 10)(Figure 4.5).

La figure 4.5 compare les différents résultats de nos simulations avec la loi des mélanges. Dans le cas où nous avons pu faire les calculs avec le modèle 3D ($L = 1 mm$), nous constatons que les valeurs de λ_{3D} sont très inférieures à celles de λ_{2D} et aux résultats de la loi des mélanges. Une origine possible de ces différences est peut être due au rapport entre la valeur du flux de chaleur et la taille des éléments. Nous rappelons, à ce propos, que nous avons mis en évidence l'influence de ce rapport dans le cas du modèle de dispersion de sphères (Chapitre 2, section 2.2.2.2 p. 60).

Nous constatons ainsi que seul les modèles 2D considérant une longueur de fibres de 10 mm et 20 mm ont un comportement proche de la loi des mélanges. Cela confirme que la condition $L \gg D$ doit toujours être vérifiée pour les modèles de renforts UD. En d'autres termes, les rapports D/L (cf. figure 4.2) doivent être d'au moins $3.5 \cdot 10^{-4}$.

La définition de la conductivité thermique longitudinale est assez simple. Par contre, celle de la conductivité thermique transverse est plus complexe, comme nous allons le voir en section 4.2.3.

L (mm)	b (μm)	v_f (%)	λ_{2D} ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	λ_{3D} ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	Loi des mélanges ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
1	1	77.77	315.85	189.44	388.93
	2	63.64	196.69	98.04	318.25
	3	53.85	135.11	60.61	269.32
	4	46.67	100.21	41.15	233.44
2	1	77.77	348.63	-	
	2	63.64	243.12	-	
	3	53.85	180.18	-	
	4	46.67	139.86	-	
10	1	77.77	380.23	-	
	2	63.64	300.30	-	
	3	53.85	245.10	-	
	4	46.67	206.19	-	
20	1	77.77	384.62	-	
	2	63.64	308.64	-	
	3	53.85	256.74	-	
	4	46.67	219.06	-	

TABLEAU 4.2 – Valeurs du coefficient de conductivité thermique longitudinal des modèles COM-SOL en fonction de la fraction volumique de fibres et des paramètres géométriques. La loi des mélanges est indépendante de la longueur L .

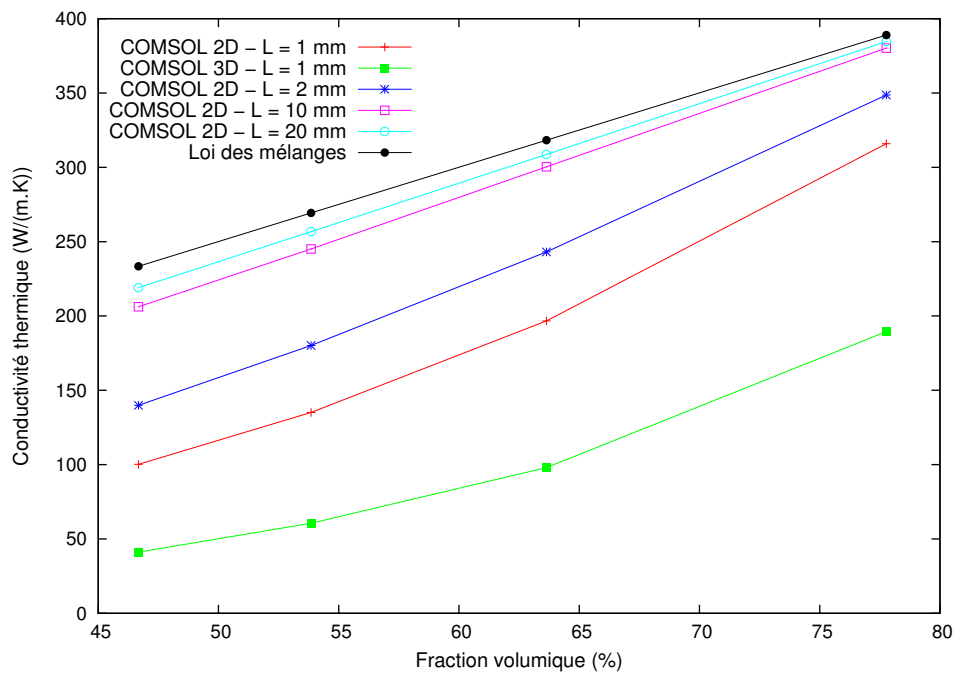


FIGURE 4.5 – Évolution du coefficient de conductivité thermique longitudinal en fonction de la fraction volumique de fibres pour différentes longueurs L de fibres. $\lambda_m = 0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $\lambda_{fl} = 500 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ et $\lambda_{ft} = 5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$

4.2.3 Conductivité thermique transverse

4.2.3.1 Expérimental

Dans le but de produire des résultats expérimentaux sur les composites UD pour comparer aux simulations, nous avons fabriqué, par enroulement filamentaire, des plaques stratifiées. Pour cela nous avons sélectionné une fibre XN-90-60S (ou CN-90-60S même fibre), de chez Nippon Graphite Fibre, que nous sommes venus enrouler autour d'une plaque en aluminium par enroulement filamentaire (Figure 4.6). La résine d'imprégnation est la *R.12.13.03.i1* déjà utilisée au chapitre 3 pour la matrice dopée.



FIGURE 4.6 – Enroulement filamentaire de la fibre XN-90-60S

Les caractéristiques de la fibre XN-90-60S sont répertoriés dans la tableau 4.3.

Nombre de filaments	Module de Young (GPa)	Contrainte à la rupture (MPa)	Masse volumique ($kg.m^{-3}$)	Grammage ($g/1000m$)	λ_{fl} ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
6000	860	3430	2.19	880	500

TABLEAU 4.3 – Caractéristiques des fibres CN-90-60S (XN-90-60S) de chez Nippon Graphite Fibre

Nous cherchons à caractériser le coefficient de conductivité thermique transverse de nos échantillons. Pour cela nous avons utilisé, comme pour les échantillons de matrice dopée, un moyen de mesure par méthode flash : le LFA 457 de chez NETZSCH (chapitre 3, p. 95). Pour rappel, ce dispositif effectue une mesure de diffusivité thermique de l'échantillon. Le coefficient de conductivité thermique est déduit, par la suite, par l'équation(3.1) (Chapitre 3, p. 92), tel que nous l'avons déjà décrit précédemment.

Nous allons donc dans cette section présenter les différentes mesures nous permettant d'obtenir les caractéristiques thermiques de nos échantillons.

Fraction volumique réelle de fibres Nous avons déterminé la fraction volumique réelle de fibres par dissolution à l'acide. La mesure a été faite sur 4 échantillons. Le tableau 4.4 regroupe les valeurs moyennées de ces mesures.

Masse volumique (g/cc)	Fraction volumique de fibres (%)	Taux de porosité (%)
1.301 ±0.022	48.27 ±6.68	10.73±3.081

TABLEAU 4.4 – Mesure de la fraction volumique réelle de fibres de renfort UD par dissolution à l'acide

Nous constatons un fort taux de porosité de l'ordre de 10%, à la fois par les mesures, par dissolution à l'acide, de la fraction volumique de fibres et par les observations aux microscopes optiques (Figure 4.7).



FIGURE 4.7 – Section du renfort UD fabriqué par enroulement filamentaire

Ce taux de porosité n'est pas négligeable. En effet, dans la littérature [46], Rolfes et al. ont étudié l'influence du taux de porosité sur la valeur du coefficient de conductivité thermique transverse, pour des composites époxy / M40 + (LY556/HT976). Avec une fraction volumique de fibres de 49.3% et un taux de porosité de l'ordre de 5%, ils ont constaté un abatement sur le coefficient de conductivité thermique transverse de l'ordre de 8%.

Diffusivité thermique Nous avons mesuré la diffusivité thermique en fonction de la température. Nous avons donc effectué un balayage en température de -80 °C à 100 °C. Ce balayage en température nécessite de réaliser les essais sous atmosphère d'hélium avec un débit de 100 ml / min.

Le tableau 4.5 récapitule les valeurs de la diffusivité thermique des échantillons UD.

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
a (mm ² /s)	0.588 ±0.0289	0.53 ±0.0132	0.472 ±0.0088	0.42 ±0.0090	0.396 ±0.0081	0.35 ±0.0190	0.284 ±0.0104

TABLEAU 4.5 – Mesures moyennes de diffusivité thermique du renfort UD par méthode flash

Chaleur spécifique La détermination de la chaleur spécifique des échantillons est réalisée par DSC , de la même manière que pour les échantillons de matrice dopée (chapitre 3, p. 98). Le tableau 4.6 récapitule les valeurs de la chaleur spécifique des échantillons UD.

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
C_p (J/g/K)	0.5865 ± 0.0415	0.6309 ± 0.0132	0.7369 ± 0.0414	0.8611 ± 0.0397	0.9622 ± 0.0402	1.073 ± 0.0367	1.364 ± 0.1096

TABLEAU 4.6 – Mesures moyennes de la chaleur spécifique du renfort UD par DSC

Coefficient de conductivité thermique transverse Comme nous l'avons expliqué précédemment, le coefficient de conductivité thermique transverse est déduit de l'équation(3.1).

Le tableau 4.7 récapitule donc les valeurs moyennes du coefficient de conductivité thermique transverse des échantillons de renfort UD.

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
λ ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	0.449	0.435	0.452	0.470	0.495	0.489	0.504

TABLEAU 4.7 – Valeurs moyennes du coefficient de conductivité thermique transverse du renfort UD

4.2.3.2 Modèle numérique

De la même manière que pour le modèle longitudinal, nous avons défini un V.E.R. contenant une fibre isotrope transverse de section circulaire entourée de résine (Figure 4.8).

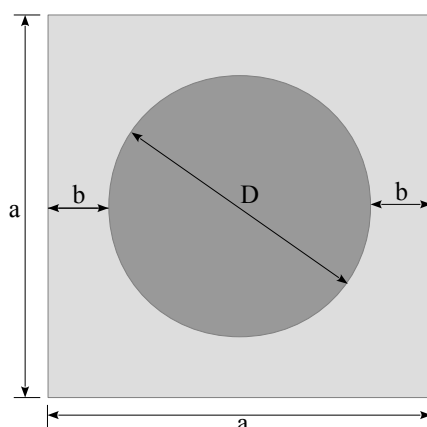


FIGURE 4.8 – V.E.R. 2D dans le cas de la caractérisation de la conductivité thermique transverse de renforts UD

Nous avons constaté que pour le modèle longitudinal, le cas 3D n'était pas exploitable à cause de la différence d'échelle entre les dimensions transverse et longitudinale. Pour cette raison, nous

n'avons développé que le modèle 2D du cas transverse. De la même manière que pour le modèle longitudinal nous avons imposé comme conditions aux limites une température initiale $T_0 = 0 \text{ K}$ sur une face et un flux de chaleur surfacique $\phi_s = 100 \text{ W.m}^{-2}$ sur la face opposée tel que défini par la Figure 4.9.

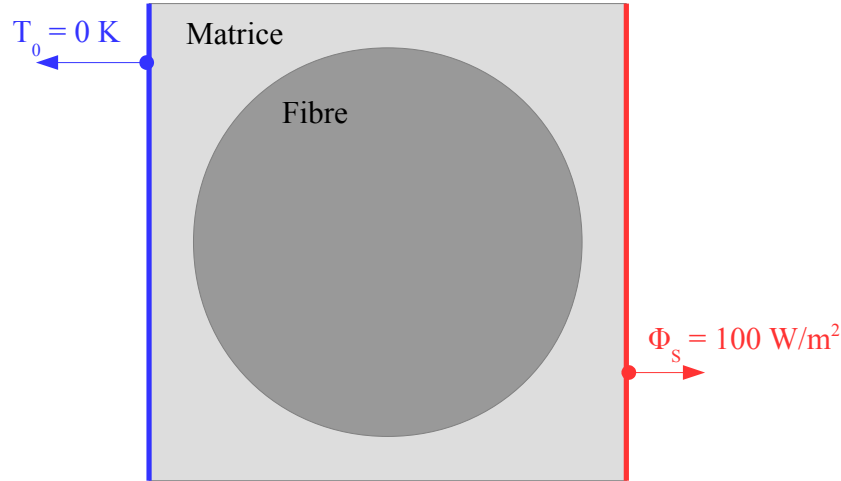


FIGURE 4.9 – Conditions aux limites dans le cas d'un flux de chaleur transverse

Étant donné que nous n'avons développé qu'un modèle 2D, il n'y a pas de paramètre de longueur de fibres, L , à définir. Les paramètres géométriques du modèle sont donc les suivants :

- diamètre des fibres : $D = 7 \mu\text{m}$;
- épaisseur de la résine : $b = 0.05, 0.25, 0.45, 0.65, 0.85, 1.05, 1.45 \mu\text{m}$ ($v_f = 76.34, 68.42, 61.66, 55.86, 50.84, 46.47, 39.27$).

Comme pour le modèle longitudinal, nous avons mené une étude paramétrique sur les valeurs de l'épaisseur de résine autour de la fibre, afin de voir l'influence de la fraction volumique de fibres sur le coefficient de conductivité thermique transverse. Les résultats de la simulation ont ensuite été comparés aux différents modèles analytiques présentés dans la section 1.3.1.2 du chapitre 1 page 28. Les modèles analytiques utilisés sont :

- la loi des mélanges ou couches en parallèle (page 28)
- le modèle de Springer (page 29)
- le modèle autocohérent (page 31)
- le modèle de Halpin-Tsai (page 32)
- le modèle de Lewis-Nielsen (page 33)
- le modèle de Hasselman et Johnson (page 34)

Dans le cas du modèle de Lewis-Nielsen, nous nous sommes placés dans le cas de fibres réparties de manière cubique dans les mèches (tableaux 1.3 et 1.4 chapitre 1 page 34) et dont le flux de chaleur est perpendiculaire aux fibres. Dans ces conditions, la littérature nous donne : $A = 0.5$ et $\phi_m = 0.785$. Dans le cas du modèle de Hasselman et Johnson, l'interface fibres/matrice est considérée imparfaite. La conductance, h_c , représentant la valeur de la résistance thermique de contact a été prise égale à 1.10^7 W.K^{-1} [62].

Les paramètres matériaux sont les suivants :

- coefficient de conductivité thermique de la matrice (R12.13.03.i1) : $\lambda_r = 0.1455 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$;

- coefficient de conductivité thermique longitudinale des fibres (CN-90-60S) : $\lambda_{fl} = 500 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$;
- coefficient de conductivité thermique transverse des fibres (CN-90-60S) : $\lambda_{ft} = 5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$.

La figure 4.10 montre deux exemples de distribution de température du modèle transverse 2D dans les cas $b = 0.05 \mu\text{m}$ et $b = 1.45 \mu\text{m}$.

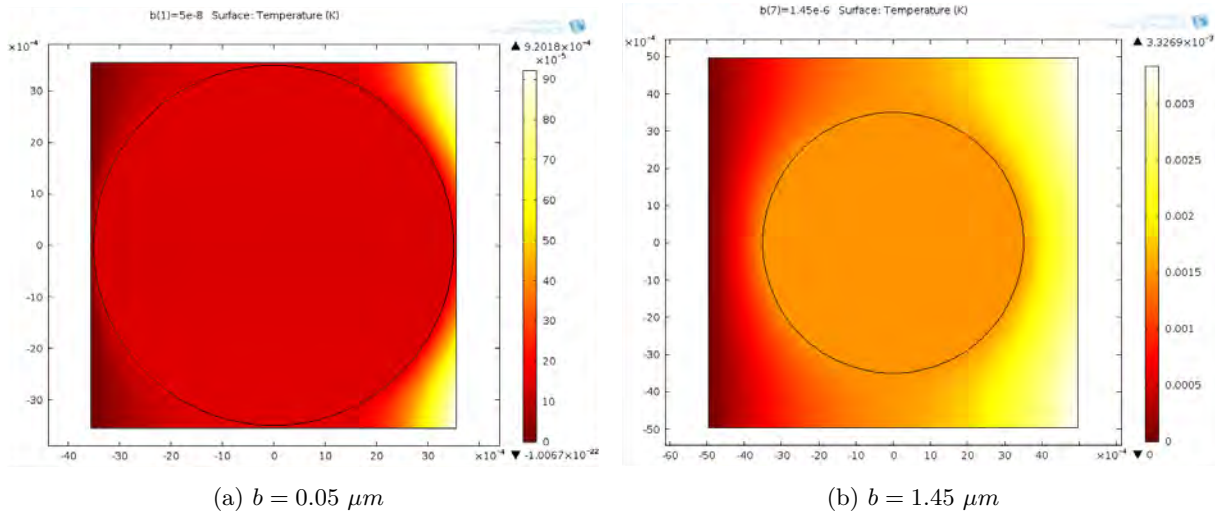


FIGURE 4.10 – Exemple de la distribution de température du modèle transverse 2D

Le tableau 4.8 récapitule les résultats obtenus par la simulation en fonction de la fraction volumique de fibres. Les paramètres matériaux sont les mêmes que pour le modèle longitudinal.

b (μm)	v_f (%)	Comsol	Loi des mélanges	ST ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	AC HT HJ	LN
0.05	76.34	1.324	0.562	1.242	0.895	13.685
0.25	68.42	0.802	0.433	0.733	0.675	1.653
0.45	61.66	0.612	0.363	0.547	0.550	0.924
0.65	55.86	0.506	0.318	0.448	0.470	0.661
0.85	50.84	0.439	0.287	0.385	0.414	0.526
1.05	46.47	0.392	0.265	0.342	0.373	0.445
1.45	39.27	0.329	0.235	0.287	0.317	0.350

TABLEAU 4.8 – Valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse des différents modèles en fonction de la fraction volumique de fibres et des paramètres géométriques (ST : modèle de Springer-Tsai, AC : modèle auto-cohérent, HT : modèle de Halpin-Tsai, HJ : modèle de Hasselman et Johnson, LN : modèle de Lewis-Nielsen)

La figure 4.11 montre l'évolution du coefficient de conductivité thermique transverse en fonction de la fraction volumique de fibres, pour les résultats obtenus par simulation numérique et ceux obtenus par les modèles analytiques.

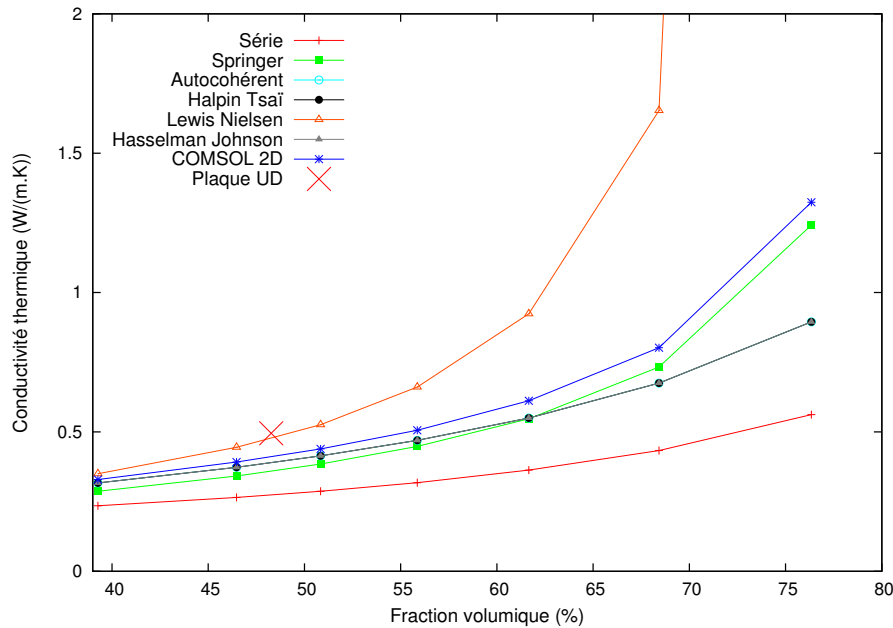


FIGURE 4.11 – Comparaison de l'évolution de la conductivité thermique transverse en fonction de la fraction volumique de fibres entre les modèles analytiques et numériques

La figure 4.11 compare les modèles avec les résultats expérimentaux obtenus à 23 ° C. Nous observons ainsi que le modèle numérique et le modèle de Springer ont la même tendance. Par contre, le point expérimental que nous avons obtenu est proche du modèle de Lewis-Nielsen. Il faut cependant faire attention à l'interprétation des résultats expérimentaux. En effet, nous n'avons pu faire qu'une seule série de mesure pour une fraction volumique de fibres donnée du fait de la faible longueur du roving de fibres XN-90-60S disponible. Nous n'avons donc pas la tendance des résultats expérimentaux en fonction de la fraction volumique de fibres.

4.3 Renforts textiles 2D

Les renforts textiles 2D utilisés pour cette étude sont de type taffetas et satin de 8. Chaque type de renfort a été caractérisé thermiquement, puis un modèle numérique a été développé sous ABAQUS afin de comparer nos différents résultats.

4.3.1 Constituants

Comme nous l'avons expliqué dans la section précédente, nous avons dirigé notre étude sur la création de préformes en fibres de carbone PITCH.

Deux types d'architecture vont être étudiés : un taffetas (EWC-300X) et un satin de 8 (EWC-600X) de chez CYTEC. Nous allons ainsi étudier l'influence du tissage sur le comportement

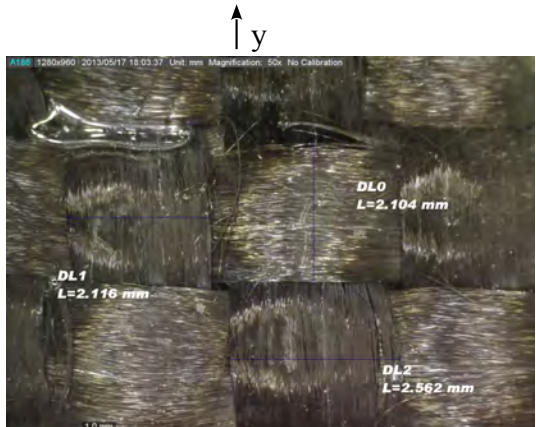
thermique dans l'épaisseur de nos matériaux composites et apporter des valeurs expérimentales de conductivités thermiques transverses, c'est-à-dire perpendiculaire au plan de stratification. La figure 4.12 montre l'architecture des renforts taffetas et satin de 8.

La principale difficulté est d'arriver à améliorer la conductivité thermique dans la direction transverse au plan de stratification d'une pièce composite. Soit donc dans une direction perpendiculaire aux fibres. Comme le montre le tableau 4.9, les fournisseurs ne donnent qu'une estimation du coefficient de conductivité thermique longitudinal des fibres, λ_{fl} , et le coefficient de conductivité thermique transverse des fibres, λ_{ft} , n'est jamais fourni. Dans la littérature [46,52], le coefficient de conductivité thermique longitudinale est généralement très supérieur au transverse, comme vu en page 123, le rapport $\lambda_{ft} = \frac{1}{100} \lambda_{fl}$.

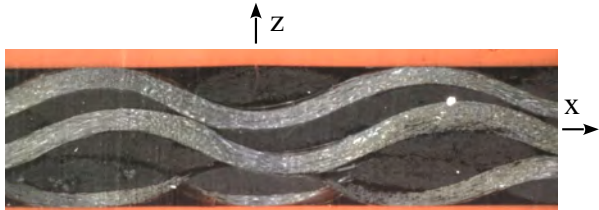
	EWC-300X	EWC-600X
Propriétés des tissus		
Tissage	Taffetas	Satin de 8
Nb de fils (chaîne/trame)	11x10 mèches/in.	20x20 mèches/in.
Largeur	86 cm	86 cm
Masse surfacique	610 $g.m^{-2}$	480 $g.m^{-2}$
Épaisseur	0.94 mm	0.84 mm
Propriétés des fibres		
Densité	2.10 g/cc	2.18 g/cc
λ_{fl} estimée	250 - 350 $W.m^{-1}.K^{-1}$	550 -650 $W.m^{-1}.K^{-1}$
Filament	4000 fibres/mèche	2000 fibres/mèches

TABLEAU 4.9 – Propriétés des tissus EWC-300X et EWC-600X données par le fournisseur CYTEC

Ces tissus sont imprégnés par un système époxyde *R12.13.03.i1* décrit dans le chapitre 3, p. 89. Le procédé utilisé pour imprégner les tissus est présenté dans la section suivante.



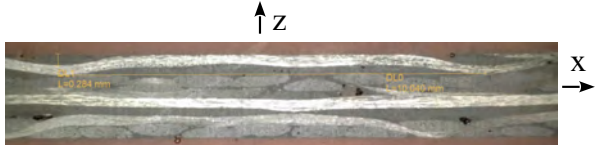
(a) Vue de dessus du tissu sec (Taffetas)



(b) Vue en coupe plaques stratifiées (Taffetas)



(c) Vue de dessus du tissu sec (Satin de 8)



(d) Vue en coupe plaques stratifiées (Satin de 8)

FIGURE 4.12 – Architecture des renforts 2D

4.3.2 Procédé de mise en forme

Les renforts, définis précédemment, ont été imprégnés de résine pure par le principe de l'injection à basse pression RTM (Resin Transfer Molding). La figure 4.13 présente le schéma de fonctionnement du procédé RTM. Le but est de produire des plaques stratifiées d'orientation $0^\circ / 90^\circ$ dans lesquelles seront prélevées différents échantillons nécessaires aux mesures de diffusivité thermique, a , de chaleur spécifique, C_p et de masse volumique, ρ .

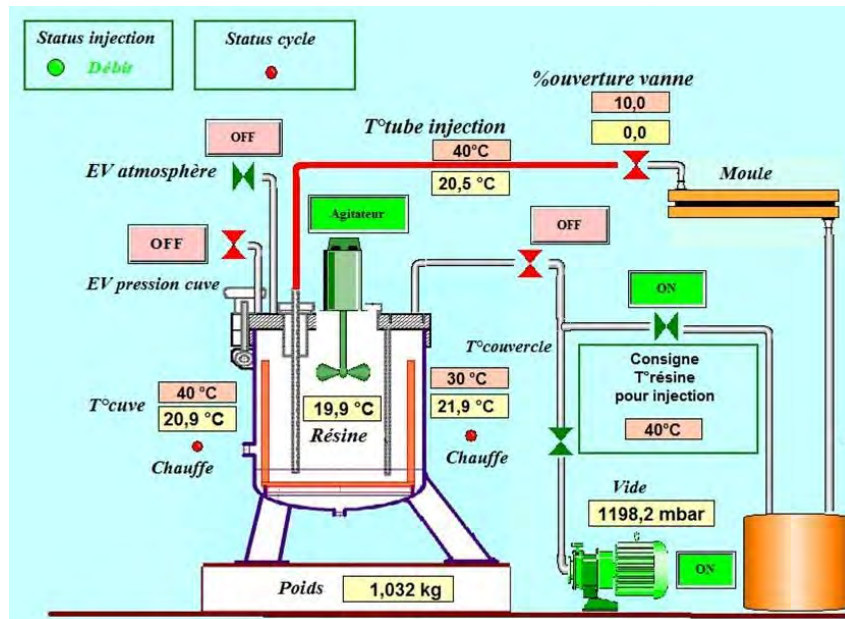


FIGURE 4.13 – Processus d'injection RTM (Resin Transfer Molding)

Ce procédé par voie liquide est très dépendant de la viscosité de la résine. En effet, étant donné que nous sommes sur un système époxy, un temps de dégazage est nécessaire. De plus, l'injection ne se fait généralement pas à température ambiante car la résine est trop visqueuse. L'injection se fait donc généralement entre 50 et 80°C , en fonction du type de résine utilisé. Une des difficultés à surmonter dans le procédé RTM réside dans le fait qu'il faut ajuster les paramètres d'injection de façon à ce que le système de résine ne polymérise pas avant la fin complète de l'injection.

Afin de garantir une bonne injection des plaques, le réglage des paramètres d'injection est primordial. Les principaux paramètres sont :

- la température du pot d'injection ($T^\circ\text{cuve}$ figure 4.13) ;
- l'ouverture de la vanne ($\%ouverture\ vanne$ figure 4.13).

À 50°C , le pot-life de la résine *R.12.13.03.i1* est de 12 minutes. Par mesure de précaution, même si le temps d'injection est rapide (quelques minutes) puisque nous avons des préformes de volume réduit, la température du pot d'injection a été fixée à 40°C .

Le pot-life étant faible à 40°C , le dégazage se fait à température ambiante. Le temps de dégazage est environ de 10 minutes. Pour accélérer l'injection, l'ouverture initiale de la vanne est de 40%. La pression est initialisée à 0.5 bar et augmente au fur et à mesure de l'injection jusqu'à atteindre les 3 bars. Le cycle de cuisson est le suivant :

- cuisson sous presse : 5h à 50 ° C puis 1h à 100 ° C. La force de fermeture du moule est de 15t.
- post-cuisson en étuve : 1h à 100 ° C.

Les cycles d'injection et de cuisson sont présentés figure 4.14.

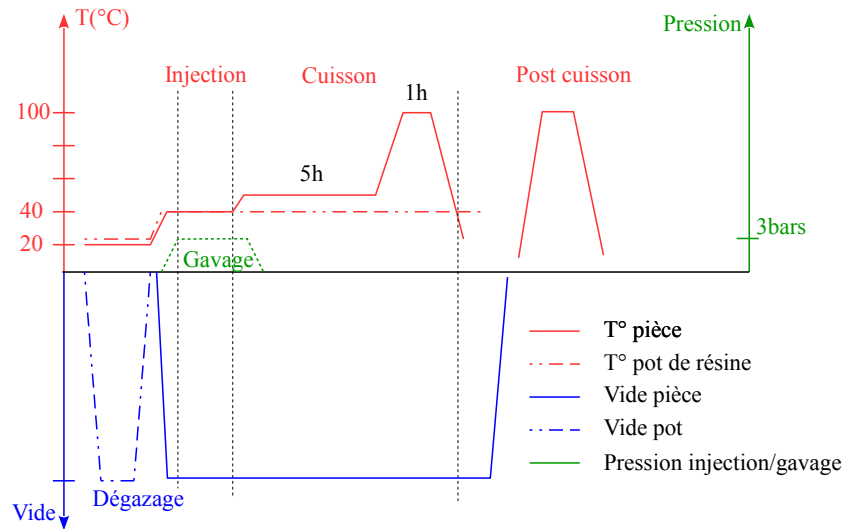


FIGURE 4.14 – Cycles d'injection et de cuisson de la résine MAP R12.13.03.i1. Procédé RTM. Presse RTM de l'ICA de Toulouse.

La figure 4.15 montre le moule en acier utilisé au sein de l'ICA. C'est un carré de 300x300 mm. Ce moule permet d'obtenir des plaques de 290x300 mm et de 2 mm d'épaisseur par l'intermédiaire d'un entrefer positionné entre le moule et le contre moule.

Avant de pouvoir injecter nos plaques nous devons dans un premier temps définir le nombre de plis (ou couches de textiles secs) à positionner dans le moule pour pouvoir atteindre la fraction volumique de fibres souhaitée.

Pour cela nous nous appuyons sur l'équation(4.2).

$$v_{théo} = \frac{NM_s}{\rho e} \quad (4.2)$$

avec $v_{théo}$ la fraction volumique de fibres théorique, N le nombre de plis, M_s le grammage (ou masse surfacique) du tissu ($g.m^{-2}$), ρ la masse volumique des fibres ($kg.m^{-3}$) et e l'épaisseur de l'entrefer (m).

Nous souhaitons obtenir une fraction volumique théorique de fibres, $v_{théo} = 43.6\%$. En nous appuyant sur les caractéristiques des tissus définies dans le tableau 4.9, nous avons déterminé le nombre de plis nécessaire pour atteindre la fraction volumique théorique de fibres. Dans le cas du taffetas, nous avons besoin d'empiler trois plis. Ces plis sont placés dans une même orientation chaîne/trame.

Dans le cas du satin de 8 par contre, pour pouvoir atteindre une fraction volumique théorique de fibres de 43.6% il faudrait mettre 3.96 plis. Nous avons donc empilé 4 plis avec comme séquence

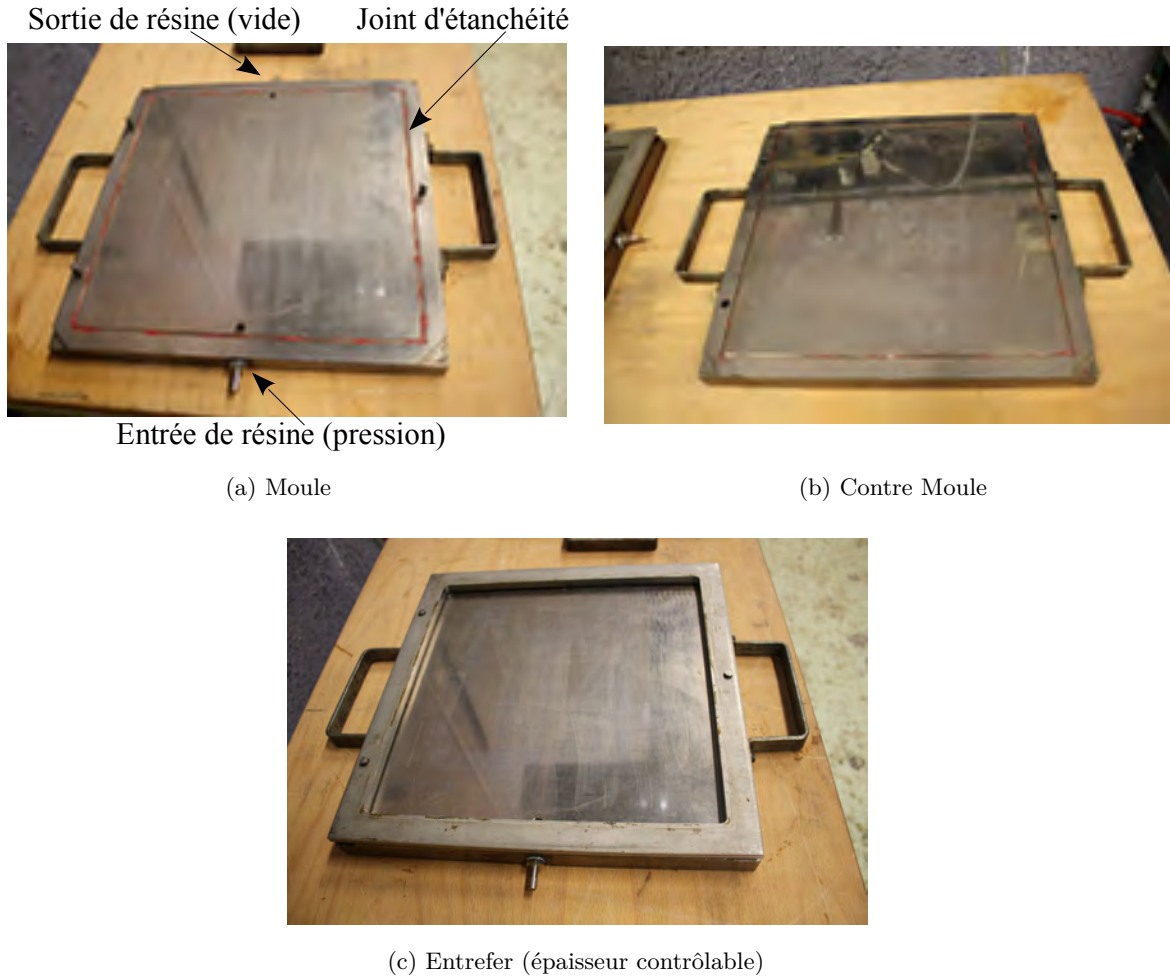


FIGURE 4.15 – Moule RTM ICA. Dimensions planes 300x300 mm

d'empilement : chaîne + trame + chaîne + trame. Nous obtenons ainsi une fraction volumique théorique de fibres de 44.04%.

4.3.3 Caractérisation thermique

Nous cherchons à caractériser le coefficient de conductivité thermique transverse de nos échantillons. Pour cela nous avons utilisé, comme pour les échantillons de matrice dopée et ceux de renforts UD, un moyen de mesure par méthode flash : le LFA 457 de chez NETZSCH (chapitre 3, p. 95). Le coefficient de conductivité thermique est déduit, par la suite, par l'équation(3.1), présentée dans la section précédente.

Nous allons donc dans cette section présenter les différentes mesures nous permettant d'obtenir les caractéristiques thermiques de nos échantillons. Les échantillons testés ont seulement été imprégnés de résine pure. En effet, un problème d'approvisionnement avec notre fournisseur de particules ne nous a pas permis de faire des essais d'imprégnation de nos renforts avec la résine chargée de particules de cuivre (Tableau 3.2, p.90).

4.3.3.1 Fraction volumique réelle de fibres

Dans la section 4.3.2, nous avons défini une fraction volumique théorique de fibres. Afin de vérifier que les plaques injectées ont une fraction volumique de fibres en adéquation avec ce que nous avons déterminé, nous avons effectué une dissolution à l'acide pour déterminer la fraction volumique réelle de fibres. La mesure a été faite sur 6 échantillons provenant de 3 zones distinctes des plaques stratifiées fabriquées en RTM. Le tableau 4.10 regroupe les valeurs moyennées de ces mesures pour les renforts de type taffetas et satin de 8.

Renfort	Masse volumique (g/cc)	Fraction massique de fibres (%)	Fraction volumique de résine (%)	Fraction volumique de fibres (%)
Taffetas	1.48±0.022	64.38±2.79	47.78±4.49	45.61±1.29
Satin de 8	1.49±0.006	61.87±2.06	51.27±2.61	42.40±1.57

TABLEAU 4.10 – Mesure de la fraction volumique réelle de fibres par dissolution à l'acide

Compte-tenu du volume du moule et des caractéristiques des tissus, nous avons calculé une fraction volumique théorique de fibres $v_{fthéo} = 43.6\%$ pour le taffetas et $v_{fthéo} = 44.04\%$ pour le satin de 8. Nous avons obtenu expérimentalement une fraction volumique réelle $v_f = 45.61\%$ pour le taffetas et $v_f = 42.40\%$ pour le satin de 8. La dispersion de mesure est inférieure à 5% et les valeurs obtenues restent proches de ce que nous souhaitions réaliser.

4.3.3.2 Diffusivité thermique

Nous avons mesuré la diffusivité thermique, a , en fonction de la température. Nous avons donc effectué un balayage en température de $-80\text{ }^\circ\text{C}$ à $100\text{ }^\circ\text{C}$. Ce balayage en température nécessite de réaliser les essais sous atmosphère d'hélium avec un débit de 100 ml / min. Compte-tenu de la géométrie des renforts textiles (Figure 4.12), nous avons utilisé un grand nombre d'échantillons, prélevés dans les plaques stratifiées RTM. Effectivement, pour être sûr de recouvrir le V.E.R. du taffetas (voir section 4.3.4), plusieurs échantillons de dimensions planes 10x10 mm ont été nécessaires.

Les tableaux 4.11 et 4.12 récapitulent les valeurs de la diffusivité thermique des échantillons de taffetas et de satin de 8.

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
a (mm ² /s)	1.955 ±0.014	1.840 ±0.021	1.677 ±0.024	1.526 ±0.020	1.456 ±0.0009	1.360 ±0.005	1.138 ±0.006

TABLEAU 4.11 – Mesure de diffusivité thermique du taffetas par méthode flash

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
a (mm^2/s)	1.137 ± 0.006	1.100 ± 0.012	1.002 ± 0.010	0.940 ± 0.019	0.855 ± 0.004	0.803 ± 0.006	0.674 ± 0.016

TABLEAU 4.12 – Mesure de diffusivité thermique du satin de 8 par méthode flash

4.3.3.3 Chaleur spécifique

La détermination de la chaleur spécifique des échantillons est réalisée par DSC , de la même manière que pour les échantillons de matrice dopée (chapitre 3, p. 98). Les tableaux 4.13 et 4.14 récapitulent les valeurs de la chaleur spécifique des échantillons de taffetas et de satin de 8.

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
C_p (J/g/K)	0.695 ± 0.017	0.736 ± 0.015	0.838 ± 0.017	0.947 ± 0.021	1.039 ± 0.022	1.132 ± 0.029	1.353 ± 0.044

TABLEAU 4.13 – Mesure de la chaleur spécifique du taffetas par DSC

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
C_p (J/g/K)	0.593 ± 0.032	0.635 ± 0.035	0.733 ± 0.039	0.838 ± 0.041	0.924 ± 0.045	1.009 ± 0.047	1.227 ± 0.053

TABLEAU 4.14 – Mesure de la chaleur spécifique du satin de 8 par DSC

4.3.3.4 Coefficient de conductivité thermique transverse

Comme nous l'avons expliqué précédemment, le coefficient de conductivité thermique transverse est déduit de l'équation(3.1).

Les tableaux 4.15 et 4.16 récapitulent donc les valeurs moyennes des coefficients de conductivité thermique transverses des échantillons de taffetas et de satin de 8.

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
λ ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	2.011	2.004	2.080	2.139	2.239	2.278	2.279

TABLEAU 4.15 – Valeurs moyennes du coefficient de conductivité thermique transverse du taffetas

Nous remarquons que le coefficient de conductivité thermique augmente avec la température. Cette évolution est en accord avec ce que nous avons trouver dans la littérature. En effet, Sweeting et al. [79] ont constaté une augmentation des coefficients de conductivité thermique

T (° C)	-80	-60	-30	0	23	50	100
λ ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	1.005	1.041	1.094	1.174	1.177	1.209	1.232

TABLEAU 4.16 – Valeurs moyennes du coefficient de conductivité thermique transverse du satin de 8

longitudinal et transverse d'un taffetas époxy/fibres de carbone. Ils ont ainsi noté une augmentation de 2 à 3 $W.m^{-1}.K^{-1}$ dans le plan et 0.5 à 0.7 $W.m^{-1}.K^{-1}$ en transverse, sur une plage de température de 22 à 165 ° C.

Nous constatons également, que pour une fraction volumique du même ordre de grandeur (45.61% pour le taffetas et 42.40% pour le satin de 8), le taffetas donne des valeurs de coefficients de conductivité thermique transverse deux fois supérieures aux valeurs obtenues pour le satin de 8. Le satin de 8 ayant des caractéristiques thermiques inférieures au taffetas et sa mise en œuvre étant plus complexe, nous ne modéliserons que le taffetas.

L'explication physique de cette différence entre le taffetas et le satin de 8, s'explique par le pas d'ondulation des fibres de chaîne des structures textiles. Dans le cas du taffetas, nous noterons que les fibres vont beaucoup plus fréquemment de la face inférieure vers la face supérieure du stratifié, que dans le cas du satin de 8 (Figure 4.12). Il convient de souligner que cette supériorité du taffetas est obtenue malgré des fibres (EWC-300X) deux fois moins conductrices que celles du satin de 8 (EWC-600X) (cf. tableau 4.9).

4.3.4 Modélisation numérique

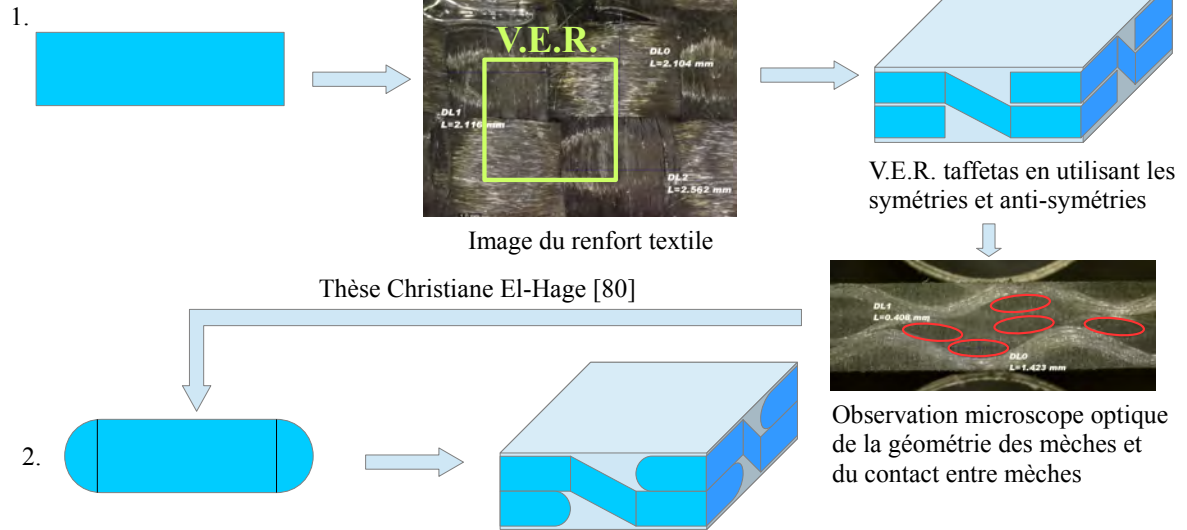
Dans cette section, nous allons présenter la modélisation numérique de la réponse thermique du taffetas, EWC-300X, décrit précédemment.

L'évolution des modèles numériques dans cette section est le résultat d'un dialogue avec les valeurs expérimentales. Ce dialogue peut être décrit par la figure 4.16.

L'objectif de cette étude est d'analyser l'influence de la structure et du coefficient de conductivité thermique du tissu sur le coefficient de conductivité thermique effectif d'un matériau composite époxy/fibres de carbone. Cette étude se fera également en fonction de la fraction volumique de fibres et de l'épaisseur de la couche de résine. Par contre, nous n'avons pas pris en compte l'effet de la température. Pour les simulations, les données matériaux sont celles qu'ils présentent à l'ambiante (23 ° C).

Les simulations ont été effectuées à l'aide du code de calculs éléments finis ABAQUS implicite à l'échelle mésoscopique, c'est-à-dire à l'échelle des plis. Les tissus ont été réduits à leur V.E.R. le plus simple. Ces V.E.R. ont été réalisés par l'intermédiaire du logiciel de conception CATIA V5.

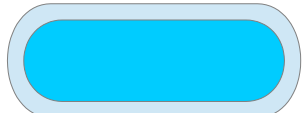
Géométrie de la mèche



Fraction volumique de fibres

MECHE → Constitution de la mèche : $v_f \text{ mèche} = v_{fm}$

1. $v_{fm} = 100\%$ de fibres [47,48,52]



GLOBALE → Épaisseur de résine : e_r/e_m



$e_r/e_m = 10\%$
 $v_f = 68.82\%$



$e_r/e_m = 50\%$
 $v_f = 50.47\%$

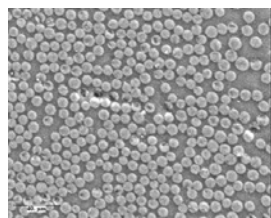
- Dissolution à l'acide : 45.61%



- Observation Microscope Optique :
épaisseur de résine \ll épaisseur mèche

- Fraction volumique globale de fibres et épaisseur de résine du modèle numérique trop élevées

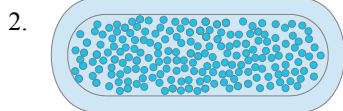
Observation MEB mèche



v_{fm} littérature [81] = 60%

v_{fm} analyse microscope = 63.4%

MECHE



λ_{ml} : loi des mélanges

λ_{mt} : modèle de Lewis-Nielsen
(Résultats renforts UD)

Homogénéisation de la mèche

$v_{fm} = 63.4\%$
 $v_f = 47.52\%$
 $e_r/e_m = 1\%$

FIGURE 4.16 – Dialogue numérique/expérimental

4.3.4.1 Géométrie de la mèche

Section rectangulaire Pour cette première approche du problème, nous avons posé les hypothèses suivantes :

- les mèches sens chaîne et sens trame sont identiques ;
- une couche de résine est présente au-dessus et en-dessous du renfort ainsi qu'entre les mèches ;
- la section des mèches est choisie rectangulaire ;
- les mèches ne sont pas imprégnées de résine, autrement dit nous considérons que la fraction volumique de fibres dans les mèches est de 100% [47,48,52], comme le montre la figure 4.17.

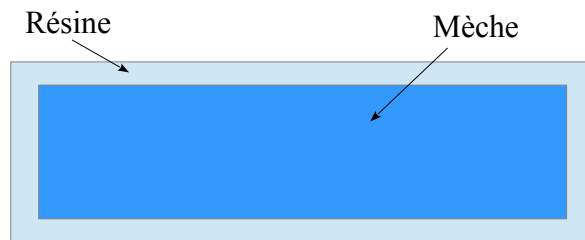


FIGURE 4.17 – Hypothèse mèche non imprégnée

L'architecture du taffetas peut être définie comme un motif périodique. En effet, en utilisant les symétries et anti-symétries présentes dans l'architecture du renfort, nous pouvons définir un V.E.R. tel que présenté par la figure 4.18.

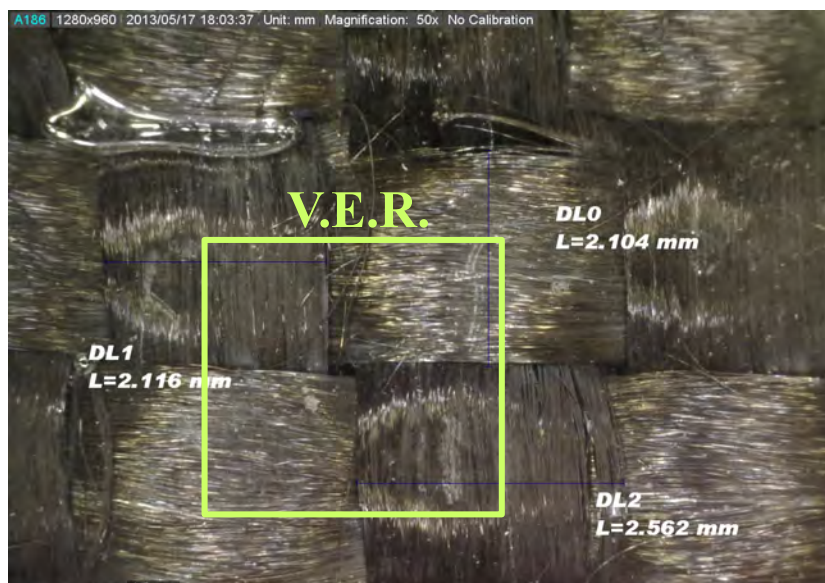


FIGURE 4.18 – Définition du V.E.R. du taffetas

La figure 4.19 montre le premier modèle de V.E.R. développé pour le taffetas en s'appuyant sur les hypothèses émises.

Section demi cercles/rectangle L'observation au microscope optique de la section des plaques stratifiées, nous a permis de mettre en évidence la forme elliptique de la section des mèches (Figure 4.20).

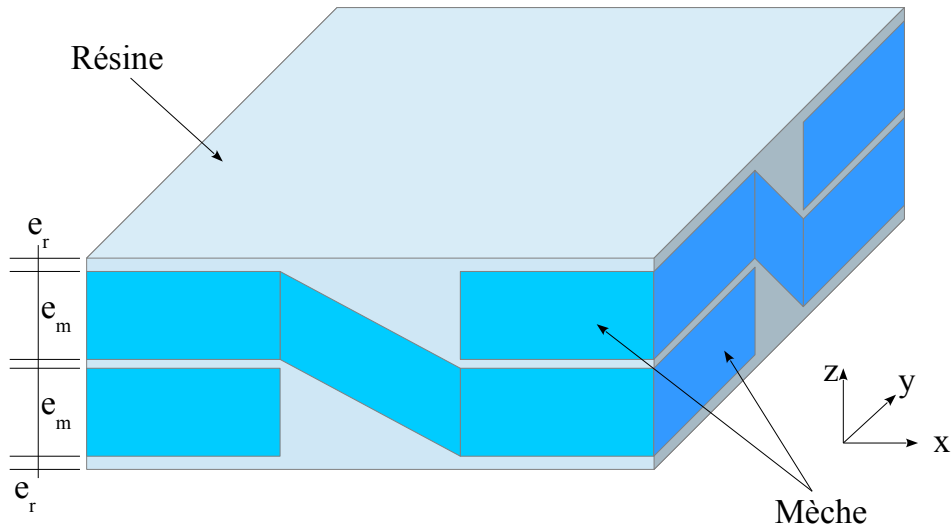


FIGURE 4.19 – V.E.R. du tissu taffetas EWC-300X

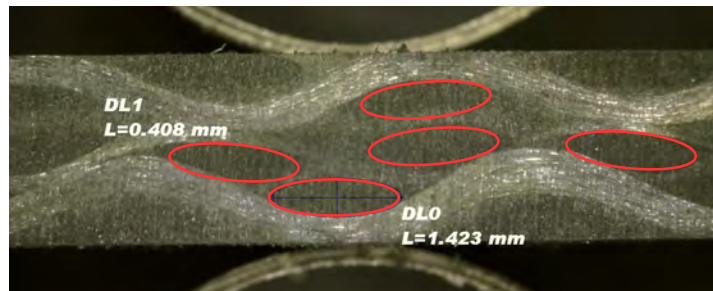


FIGURE 4.20 – Observation au microscope optique de la section des mèches et du contact entre mèches du tissu taffetas

Cependant, la problématique de la forme elliptique est qu'elle complexifie grandement le maillage. Nous nous sommes donc appuyés sur les travaux de thèse de Christiane El Hage [80], qui propose d'assimiler la forme elliptique à l'assemblage d'un rectangle et de demi cercles, comme représenté sur la figure 4.21.

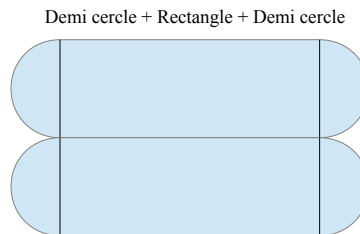


FIGURE 4.21 – Nouveau profil de la section des fibres [80]

Nous avons également considéré qu'il y a un contact direct entre les fibres sens chaîne et sens trame, comme nous le montre la figure 4.20. Nous ne considérons donc plus que deux couches de résine, une au-dessus et une en-dessous du renfort.

Nous avons donc défini, figure 4.22, un nouveau V.E.R. prenant en compte ces nouvelles hypothèses.

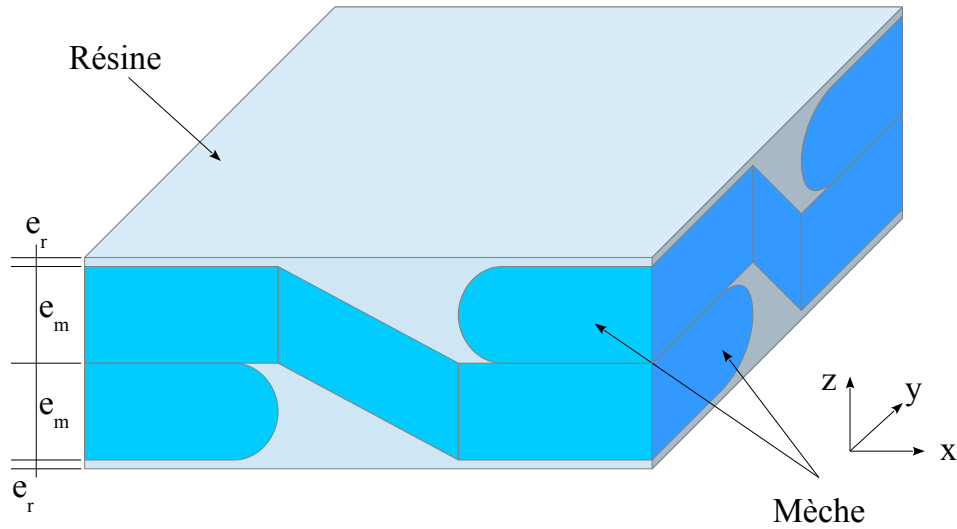


FIGURE 4.22 – V.E.R amélioré du tissu taffetas EWC-300X

4.3.4.2 Fraction volumique de fibres

Fraction volumique de fibres dans les mèches = 100% Dans ce nouveau V.E.R., nous avons considéré que les mèches sont constituées à 100% de fibres [47, 52]

Nous allons définir les paramètres matériaux en considérant que la conductivité thermique de la matrice est isotrope tandis que celle des mèches est orthotrope. La valeur du coefficient de conductivité thermique de la matrice est choisie égale à celle du système époxyde caractérisé au chapitre 3 p. 106, soit $\lambda_r = 0.1455 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Dans le cas du taffetas, étant donné que son comportement thermique est orthotrope, deux coefficients de conductivité thermique sont à déterminer : le coefficient de conductivité thermique longitudinal, λ_{ml} , et le coefficient de conductivité thermique transverse, λ_{mt} .

Les paramètres matériaux sont les suivants :

- coefficient de conductivité thermique longitudinale des fibres (EWC-300X) : $\lambda_{fl} = 300 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ (valeur moyenne tableau 4.9)
- coefficient de conductivité thermique transverse des fibres (EWC-300X) : $\lambda_{ft} = 3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
- coefficient de conductivité thermique de la matrice (R12.13.03.i1) : $\lambda_r = 0.1455 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$

Afin de déduire de manière simple le coefficient de conductivité thermique transverse effectif de notre modèle, nous avons imposé comme condition aux limites une variation de température de 10 K entre les faces supérieure et inférieure du V.E.R. perpendiculaires à l'axe z, tel que présenté sur la figure 4.23 ($T_1 - T_0 = 10 \text{ K}$).

Le flux de chaleur est calculé sur les faces supérieure et inférieure et la conductivité thermique transverse effective du composite, λ_e est déterminée par l'intermédiaire de l'équation de la chaleur définie par l'équation(2.2) (Chapitre 2 p. 56).

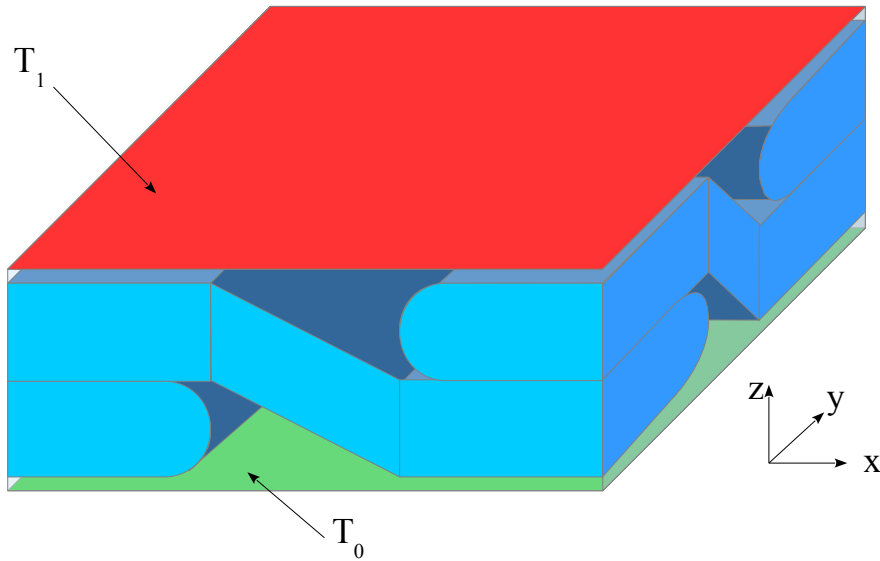


FIGURE 4.23 – Conditions aux limites appliquées sur le V.E.R. taffetas

De la même manière que pour le cas du renfort UD, le coefficient de conductivité thermique transverse est déduit de l'équation de la chaleur par l'intermédiaire de l'équation 4.1, en remplaçant la longueur, L , par l'épaisseur du composite, $e_{\text{plaque}} = 2(e_r + e_m)$. L'équation(4.1), déduite de l'équation de la chaleur, détermine le coefficient de conductivité thermique transverse.

Comme nous l'avons présenté précédemment, nous souhaitons étudier l'influence de l'épaisseur de la couche de résine sur la valeur du coefficient de conductivité thermique transverse effectif. Pour cela, nous avons défini le rapport e_r/e_m , qui représente le rapport entre l'épaisseur des couches de résine et l'épaisseur des mèches. Ce rapport impacte directement la fraction volumique de fibres. Le tableau 4.17 regroupe les valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse effectif, λ_{te} , en fonction du rapport e_r/e_m .

e_r/e_m	5%	10%	50%
v_f (%)	72.10	68.82	50.47
$\lambda_{te}(W.m^{-1}.K^{-1})$ à 23 ° C	1.58	0.99	0.37

 TABLEAU 4.17 – Valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse en fonction du rapport e_r/e_m obtenues par simulation ABAQUS

Nous constatons ainsi que plus le rapport e_r/e_m augmente, c'est-à-dire l'épaisseur des couches de résine est grande et donc plus la fraction volumique de fibres diminue, plus la valeur du coefficient de conductivité thermique transverse effectif diminue. Cette évolution est logique, dans le sens où la matrice ayant une nature isolante, plus elle est présente et moins la conductivité thermique augmente. Par contre, si nous comparons ces premiers résultats avec les résultats

expérimentaux obtenus précédemment, nous constatons que dans le cas d'une fraction volumique de fibres $v_f = 50.47\%$ (valeur la plus proche de celle de nos échantillons ($v_f = 45.61\%$)), le modèle sous-estime grandement les valeurs obtenues expérimentalement. En effet, nous avons trouvé, expérimentalement une valeur de $2.239 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ alors que numériquement nous avons une valeur de $0.37 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Ce modèle n'est donc pas valide.

Fraction volumique de fibres dans les mèches < 100% Le modèle précédent considérait que les mèches étaient constituées à 100% de fibres, ce qui revient à dire que les mèches sont imperméable à la résine. La figure 4.24 schématise l'imprégnation réelle des mèches.

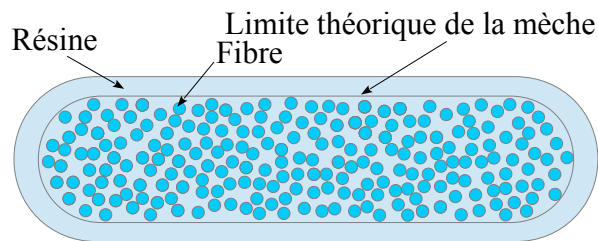
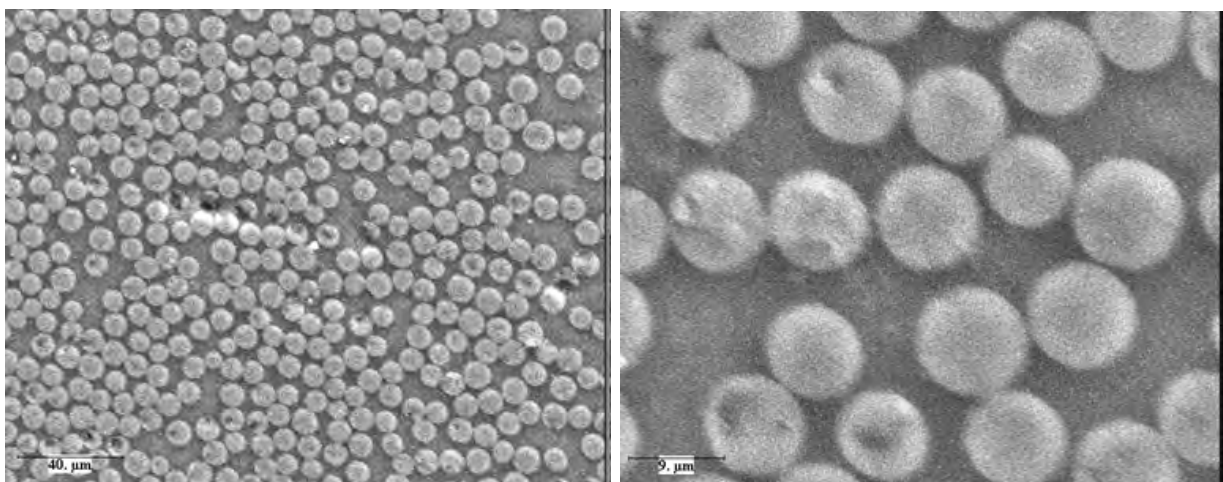


FIGURE 4.24 – Schéma de l'imprégnation réelle des mèches

Dans la littérature, Hallal et al. [81] considèrent que la fraction volumique de fibres dans les mèches est de l'ordre de 60%. Les observations MEB, figure 4.25, montrent bien la présence de résine autour des fibres. Des images issues du MEB en 256 niveaux de gris sont retravaillées sur leur contraste. Puis elles sont binarisées en noir et blanc (Figure 4.26) et un comptage des surfaces occupées par les fibres est réalisé. nous déterminons ainsi la fraction volumique de fibres dans les mèches. La valeur, sur l'analyse de 10 images, est $v_{fm} = 63.4\% \pm 4.9\%$.



(a) Grossissement 500

(b) Grossissement 2000

FIGURE 4.25 – Observations MEB des mèches du tissu EWC-300X

Ainsi, dans les prochaines simulations nous prendrons en compte une fraction volumique de fibres dans les mèches. De nouvelles valeurs des coefficients de conductivité thermique de la mèche sont ainsi définies. Pour prendre en compte la fraction volumique de fibres dans les mèches, il faut définir les nouvelles valeurs des coefficients de conductivité thermique des mèches. Pour

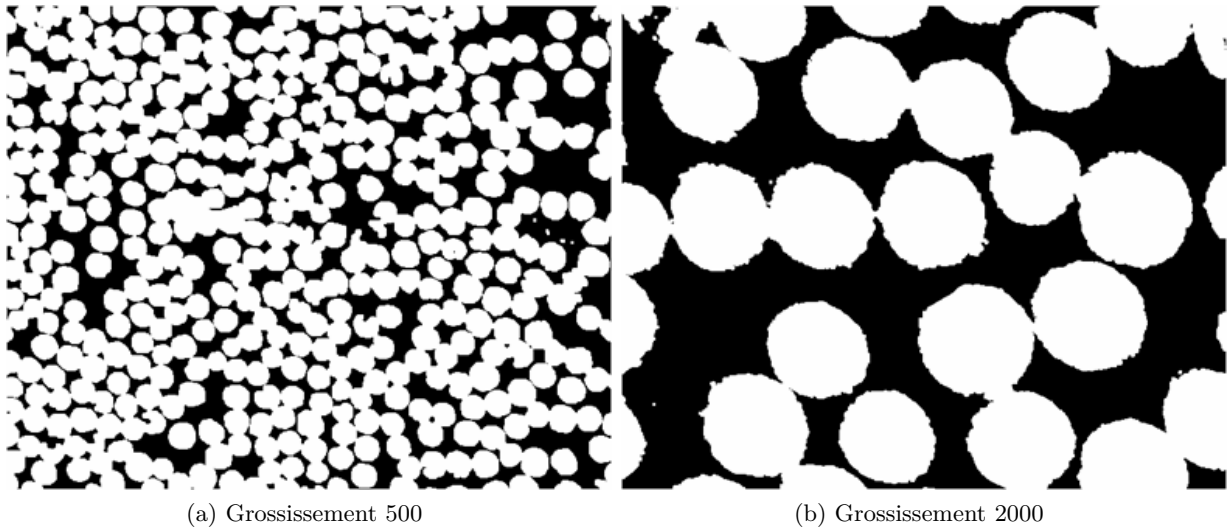


FIGURE 4.26 – Traitement des images par ImageJ

cela, nous pouvons assimiler nos mèches à des renforts UD. Ainsi, comme nous l'avons défini dans la section 4.2, la détermination du coefficient de conductivité thermique longitudinal des mèches, λ_{ml} , se base sur la loi des mélanges (équation(1.6)).

$$\lambda_{ml} = \lambda_{fl}v_{fm} + \lambda_r(1 - v_{fm}) \quad (4.3)$$

avec λ_{fl} le coefficient de conductivité thermique longitudinal de la fibre, v_{fm} la fraction volumique de fibres dans les mèches, λ_r le coefficient de conductivité thermique de la résine.

Par contre, dans le cas du coefficient de conductivité thermique transverse des mèches, λ_{mt} , nous avons constaté, dans la section 4.2, que le modèle numérique était proche du modèle de Lewis-Nielsen présenté dans le chapitre 1, p. 33. Nous avons donc redéfini le coefficient de conductivité thermique transverse en se basant sur ce modèle (équation(1.43))

Nous avons supposé une répartition cubique des fibres dans les mèches. Les fibres sont orientées uniaxialement dans la mèche et le flux de chaleur est perpendiculaire aux fibres. La littérature nous donne, dans ces conditions, $A = 0.5$ et $\phi_m = 0.785$ [2, 3].

En nous appuyant sur la loi des mélanges, le modèle de Lewis-Nielsen et les données d'entrée suivantes :

- coefficient de conductivité thermique longitudinale des fibres : $\lambda_{fl} = 300 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$;
- coefficient de conductivité thermique transverse des fibres : $\lambda_{ft} = 3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$;
- coefficient de conductivité thermique de la résine : $\lambda_r = 0.1455 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$;
- fraction volumique de fibres dans les mèches : $v_{fm} = 0.634$.

nous obtenons les nouvelles valeurs des coefficients de conductivité thermique des mèches :

- coefficient de conductivité thermique longitudinale des mèches : $\lambda_{ml} = 190.25 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$;
- coefficient de conductivité thermique transverse des mèches : $\lambda_{mt} = 0.67 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$;

Nous avons étudié ensuite, l'influence sur le coefficient de conductivité thermique transverse, λ_t , de la variation de l'épaisseur des couches de résine. Le tableau 4.18 récapitule les résultats obtenus.

e_r/e_m	1%	2%	5%	10%
v_f (%)	47.52	47.06	45.71	43.63
λ_t (%)	2.17	1.79	1.22	0.85

TABLEAU 4.18 – Valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse du modèle taffetas obtenues par ABAQUS en fonction du rapport e_r/e_m

Nous constatons ainsi que quand l'épaisseur de résine diminue et donc la fraction volumique de fibres augmente, le coefficient de conductivité thermique transverse augmente. Nous avons trouvé expérimentalement pour $v_f = 45.61\% \pm 1.29$ un coefficient de conductivité thermique transverse $\lambda_t = 2.238 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Les résultats de simulation les plus proches des résultats expérimentaux sont ceux correspondants au cas d'un rapport e_r/e_m de 1%, soit une fraction volumique de fibres de 47.52%. Cela correspond à une erreur de 1.32% sur la valeur expérimentale. Pour cette fraction volumique de fibres, la simulation donne une valeur du coefficient de conductivité thermique transverse de $2.17 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, ce qui correspond à une erreur de 3.04% sur la valeur expérimentale. Ces résultats donnent une très bonne corrélation avec les résultats expérimentaux, l'erreur restant acceptable. Le modèle avec un rapport e_r/e_m de 1% est validé.

4.3.4.3 Cas de la matrice chargée de particules de cuivre

Le modèle développé dans la section précédente a été implémenté avec les caractéristiques homogénéisées de la matrice chargée de particules de cuivre, obtenues au chapitre 3 page 106. Les résultats obtenus sont répertoriés dans le tableau 4.19.

	Résine pure	Résine chargée 5% Cu	Résine chargée 10% Cu	Résine chargée 15% Cu
λ_r ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	0.1455	0.3117	0.4806	0.7038
λ_{ml} ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	190.25	190.31	190.37	190.45
λ_{mt} ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	0.67	1.16	1.50	1.82
λ_t ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	2.17	3.25	3.99	4.70

TABLEAU 4.19 – Valeurs du coefficient de conductivité thermique transverse du modèle taffetas obtenues par ABAQUS en fonction de la fraction volumique de particules de cuivre dispersées dans la matrice

Nous avons supposé que les particules étaient présentes à l'intérieur des mèches. Les coefficients de conductivité thermique longitudinal et transverse de la mèche sont donc influencés par le coefficient de conductivité thermique de la matrice dopée. Nous constatons ainsi que le

coefficient de conductivité thermique longitudinal de la mèche est très peu influencé par l'apport de particules dans les mèches. Par contre le coefficient de conductivité thermique transverse de la mèche est lui fortement influencé. En effet, quand le coefficient de conductivité thermique de la résine pure est multiplié par 4.8 environ avec un apport en volume de 15% de particules de cuivre, le coefficient de conductivité thermique transverse de la mèches est multiplié par 2.7. Il nous faut cependant prendre en considération que, en fonction de la taille des particules, leur présence dans les mèches n'est pas assurée. Dans ce cas là, seule la résine présente entre les mèches aurait les caractéristiques de la matrice chargée tandis que la détermination des conductivités thermiques longitudinale et transverse des mèches dépendrait du coefficient de conductivité thermique de la matrice pure.

4.4 Conclusion

Le chapitre 4 a été dédié aux composites à renforts fibreux unidirectionnels mais aussi textiles 2D. Le triptyque résultats expérimentaux, modèles analytiques et modèles numériques a permis de sélectionner des modèles analytiques mais aussi d'affiner la modélisation numérique sous ABAQUS.

Dans un premier temps, les travaux ont porté sur le composite unidirectionnel (typiquement le pli UD). La comparaison résultats expérimentaux /modèles analytiques a permis de montrer que la simple loi des mélanges donnait de très bons résultats vis à vis de la conductivité thermique longitudinale (sens des fibres). Par contre, en termes de conductivité transverse (directions perpendiculaire aux fibres), l'analyse ne fait ressortir que le modèle de Lewis-Nielsen capable de corrélérer correctement les valeurs expérimentales. D'un point de vue numérique, seule la modélisation bidimensionnelle (plane) a pu fournir des prédictions en bon accord avec les valeurs expérimentales et ceci en dépit du travail sur une fibre unique noyée dans de la résine. Bien évidemment, il eut été préférable de travailler sur un volume de composite unidirectionnel plus grand comprenant plusieurs fibres. Malheureusement cette étape n'a pu être conduite et reste à verser au solde des perspectives. La modélisation en 3D a été la source de plusieurs difficultés de maillage (sous COMSOL) et de fait aucun résultat n'a pu être produit.

Dans un second temps, nous nous sommes concentrés sur les composites à renforts bidimensionnels. Deux types d'architectures fibreuses - disponible commercialement avec des fibres PITCH - ont été étudiées. Il s'agit du taffetas EWC-300X et du satin de 8 EWC-600X produits par CYTEC. Des stratifiés ont été fabriqués par RTM avec une matrice époxy. Les résultats expérimentaux relatifs à la conductivité thermique suivant l'axe z - perpendiculaire au plan de stratification - montrent qu'avec des fibres deux fois moins conductrices ($\lambda_{ft} = 300 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$), les composites à renfort taffetas sont deux fois plus conducteurs que les composites à renfort satin dont la conductivité axiale des fibres (λ_{fl}) est de $600 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$. C'est là un effet de l'architecture fibreuse sur la conductivité λ_z du composite. Nous ne sommes donc plus à l'échelle du matériau (au sens des constituants) mais à celle de la structure (composite stratifié).

Cette prédominance de l'architecture taffetas sur le satin de 8 nous a conduit à focaliser le travail de modélisation numérique uniquement sur les composites à renfort taffetas. Un modèle

général de V.E.R. a été conçu sous Abaqus. Une étude paramétrique faite de différents niveaux de raffinement de la modélisation a permis de montrer que la présence de couches de matrice sur les faces supérieure et inférieure du V.E.R. composite était un paramètre clé sinon le paramètre clé du modèle quand on veut prendre en compte la fraction volumique de fibres globale du composite. De même, nous avons mis en évidence l'influence de la fraction volumique de fibres à une échelle locale - c'est-à-dire à l'intérieur des mèches ou fils du composite - sur la valeur λ_z (coefficient de conductivité thermique perpendiculaire au plan de stratification).

En dépit d'une hypothèse forte sur la valeur de la conductivité thermique radiale des fibres de carbone supposée égale à $\frac{1}{100}$ -ème de la conductivité thermique longitudinale, le travail sur les mèches de fibres et les couches de résine (v_f local / v_f global) permet d'obtenir une valeur de λ_z calculée en très bon accord (3% de différence) avec la valeur expérimentale moyenne.

Fort du résultat que nous venons d'évoquer, des simulations ont ensuite été réalisées avec des données matériaux représentatives d'une matrice époxy dopée. Ce sont les résultats de matrice époxy + cuivre du chapitre 3 qui ont été introduits dans le modèle composite.

Ce travail montre plusieurs faits importants : l'introduction de 5% en volume de particules de cuivre dans la matrice époxy renforcée par le taffetas EWC-300X multiplie par 1.5 la valeur de λ_z du composite. Le facteur multiplicatif grimpe à 2.2 si la matrice époxy comporte 15% en volume de particules. Bien entendu une validation expérimentale serait nécessaire.

Conclusions et Perspectives

CET travail s'inscrit dans le cadre du projet THEOREM et a été consacré au développement de modèles numériques, corrélés à des modèles analytiques et des résultats expérimentaux, permettant de prédire la conductivité thermique de matériaux composites constitués de renforts de fibres longues de carbone PITCH et imprégnés de matrice époxy chargée de particules dopantes.

L'étude bibliographique (chapitre 1) montre que la problématique de la conductivité thermique dans les matériaux composites est un sujet d'actualité. Nous avons ainsi mis en avant un nombre conséquent de modèles analytiques développés dans le cas de composites bi-phasiques tels que les matrices dopées. Cette étude a permis de mettre en avant l'importance de la distribution des particules, avec notamment la présence d'une périodicité ou non dans le V.E.R ainsi que la prise en compte ou non de la présence d'agglomérats. Il a également été mis en avant, l'importance d'évaluer la forme et le facteur de forme des particules, mais également de déterminer l'influence et l'ordre de grandeur de la résistance thermique de contact entre les particules et la matrice. En ce qui concerne la résistance thermique de contact, il nous a été impossible de comprendre comment certains auteurs en déterminaient la valeur. En effet, nous avons plus l'impression que les valeurs de résistance thermique avancées par certains auteurs, ont été utilisées comme des "potentiomètres" permettant ainsi aux modèles numériques de corréliser au mieux les résultats expérimentaux.

En ce qui concerne les modèles analytiques de la littérature permettant de déterminer les conductivités thermiques longitudinale et transverse des composites à renforts textiles, seuls des modèles traitant de renforts UD ou 2D semblent avoir fait l'objet de travaux publiés. Il a été mis en avant l'exploitation complexe des modèles 2D, de par leur définition entièrement basée sur la connaissance des dimensions réelles de l'architecture du renfort. Dans notre cas, où nous étions dans une pré-étude sans matériau final réel, ces modèles étaient inexploitable. De plus, de tels modèles considèrent que toutes les dimensions du renforts sont identiques. Or, nous savons que le procédé de fabrication peut intégrer des variabilités plus ou moins importantes sur les dimensions de la pièce finale. Enfin, ces modèles prennent en compte les caractéristiques intrinsèques des fibres, à savoir les conductivités thermiques longitudinale et transverse. Autant la conductivité thermique longitudinale est donnée par les fournisseurs et peut être vérifiée expérimentalement, autant la détermination de la conductivité thermique transverse d'une fibre est complexe et nous n'avons pas trouvé, à ce jour, de procédé expérimental permettant de la déterminer. Ces paramètres intrinsèques au matériau restent encore aujourd'hui très discutés.

Les méthodes de mesures que nous avons présentées sont très bien adaptées aux matériaux homogènes et isotropes. Cependant, la plupart des auteurs utilisent ces mêmes dispositifs pour des matériaux composites qui ont un comportement anisotrope. Certains dispositifs ont été optimisés de manière à caractériser le comportement thermique de matériaux composites isotropes transverses. L'interprétation des résultats obtenus est encore sujette à controverse. Enfin, nous n'avons pas trouvé dans la littérature de modèles analytiques prédisant la conductivité thermique d'un composite constitué d'une matrice chargée de particules dopantes et renforcée de fibres longues.

Le chapitre 2 a été l'occasion de présenter le développement de modèles numériques générant des dispersions aléatoires de particules dans un V.E.R. prédéfini. Nous avons mis en évidence qu'avec des géométries, telles que la sphère dans un premier temps, puis l'ellipsoïde dans un second temps, en jouant avec leurs dimensions, nous pouvions approcher la majorité des géométries des particules dopantes existantes.

Du point de vue numérique, contrairement aux travaux de la littérature et pour coller au mieux à la réalité du matériau (dispersion de particules dans la matrice époxy), nous avons travaillé sur un V.E.R. sans périodicité. Un premier travail d'écriture des conditions de dispersion aléatoire de particules sphériques (toutes de même diamètre) sans interférences a été réalisé. Une étude paramétrique sur les modèles numériques de sphères dispersées aléatoirement dans un V.E.R. cubique a été réalisée. Elle a permis de montrer que :

- il y a une forte interaction entre la convergence des résultats et la taille du maillage et les conditions aux limites. En effet, si la densité de flux de chaleur imposée est trop faible par rapport à la taille des éléments du maillage le modèle diverge.
- il y a un rapport idéal entre la taille des particules dispersées (r) et la taille du V.E.R. cubique (côté L) permettant aux résultats de converger rapidement : $r/L = 0.06$.

Les résultats obtenus numériquement ont ensuite été comparés avec les modèles analytiques présentés au chapitre 1. Il a été mis en évidence un modèle analytique de référence : le modèle de Hamilton. En effet, ce modèle dépend de la sphéricité des particules et comme nous avons pu le voir dans la littérature, la géométrie des particules dopantes n'est pas toujours une sphère parfaite. En ce sens, nous avons par la suite, développé un modèle de dispersion aléatoire d'ellipsoïdes. Nous avons mené cette étude en deux étapes : un premier développement du modèle en 2D afin de s'affranchir de la troisième dimension et de simplifier ainsi la mise en place des équations et des conditions à vérifier, permettant de déterminer les collisions entre les particules. Un second développement en 3D, s'appuyant sur la démarche 2D, est ensuite réalisé.

La création du modèle 2D sous JAVA a mis en évidence l'incompatibilité entre les calculs scientifiques complexes (tels que des calculs de convergence) et le langage JAVA. La vérification de non interférence entre deux ellipses s'appuyant sur la méthode de Newton (qui est une méthode itérative), la propagation des erreurs de calculs dans le principe de convergence peut expliquer les interférences observées. L'utilisation d'un logiciel dédié aux calculs scientifiques, tel que MATLAB ou OCTAVE est une absolue nécessité. L'utilisation de la programmation en langage JAVA dans COMSOL MULTIPHYSICS doit se limiter à une application des commandes développées par COMSOL telles que la création de géométrie simples ou la définition des conditions aux limites.

Le modèle de dispersion d'ellipses 2D a donc été développé sous OCTAVE et implémenté dans COMSOL par l'intermédiaire du langage JAVA. Ce modèle nous a permis de disperser dans un V.E.R. carré une fraction volumique de particules elliptiques maximum de 20%. Nous avons ainsi pu traiter son extension au modèle 3D. Le traitement de ce modèle a été chronophage. En effet, la détermination des équations et conditions à vérifier afin d'éviter toutes collisions (ou interférences) entre particules a été très complexe. Ce développement a nécessité la collaboration de l'IMT¹. Le programme a été entièrement développé, malheureusement les temps de calculs nécessaires pour générer le V.E.R. de ce modèle, ne nous ont pas permis de l'implémenter dans COMSOL.

Les modèles développés ont permis de disperser jusqu'à 20% en volume de particules sphériques dans un V.E.R. cubique. Au-delà de cette fraction volumique, le maillage dans COMSOL devient impossible. Cette limitation dans le développement de nos modèles n'est pas une fin en soi. En effet, nous rappelons que l'objectif de ce projet est de créer un matériau composite hybride constitué d'une matrice chargée de particules dopantes et renforcée de fibres longues. Les renforts textiles représentant 45% à 55% de volume final du matériau composite, aller au-delà de 20% en volume de particules assurerait un problème d'imprégnation des renforts au moment de la mise en œuvre et de tenue mécanique de la matrice qui deviendrait trop minoritaire.

Le chapitre 3, toujours dédié à la résine chargée, a reposé sur le dialogue entre résultats expérimentaux, résultats des modèles analytiques et des modèles numériques développés au chapitre 2. Les résultats des prédictions d'évolution de la conductivité thermique obtenus au chapitre 2 (cf. figure 2.19) ont montré que l'introduction de 15% en volume de particules d'aluminium de rayon $3 \mu m$ provoquait une augmentation de 50% de la conductivité thermique ($\lambda_{résine} = 0.2 W.m^{-1}.K^{-1} \rightarrow \lambda_{résine+15\%alu} = 0.3 W.m^{-1}.K^{-1}$). Les valeurs expérimentales issues des essais sur les résines chargées époxy + 15% de particules d'aluminium montrent la validité des prédictions. En effet (cf. tableau 3.10, la conductivité de la résine LY556 D230), lorsqu'elle est chargée de 15% de particules d'aluminium Z600 (rayon moyen $3.25 \mu m$) passe de 0.207 à $0.380 W.m^{-1}.K^{-1}$.

L'utilisation de particules non sphériques pour la fabrication d'échantillons de résine chargée, a ouvert une nouvelle analyse dont l'issue a été de montrer l'importance du facteur de forme de la particule. Cela permet de départager les modèles analytiques de la littérature et de ne conserver que ceux qui offrent la possibilité de prendre en compte ce paramètre.

La confrontation expérience/simulation numérique montre que cette dernière sous-estime légèrement les valeurs expérimentales. Nous avons proposé en conclusion du chapitre 3, des pistes d'analyse des origines de cette sous-estimation. L'idée est de retenir que dans l'expérimental (matériau réel) même si les particules sont vraiment sphériques et correctement dispersées leurs diamètres peuvent varier ce qui n'est pas considéré dans le modèle.

Le produit final tel que envisagé dans le projet THEOREM a été étudié au chapitre 4. Un premier travail sur les composites à renforts unidirectionnels a permis de sélectionner des modèles analytiques. Dans le sens fibres, la loi des mélanges remplit parfaitement le rôle de bon outil de prédiction. Effectivement, la corrélation avec les résultats numériques est très bonne.

1. Institut de Mathématiques de Toulouse

Malheureusement, cet état de fait aurait mérité d'être confirmé ou infirmé avec des valeurs expérimentales.

Pour les composites à renforts 2D, les mesures expérimentales de la conductivité thermique transverse (perpendiculaire au plan de stratification) ont révélé l'effet prépondérant de l'architecture fibreuse. Les composites renforcés par du taffetas présentant une bien meilleure conductivité que ceux renforcés de satin.

La modélisation numérique conduite avec plusieurs niveaux de raffinement, met en évidence l'importance des fractions volumiques de fibres locale et globale. Locale c'est dans les mèches de fibres de carbone et globale c'est dans le stratifié. Dans ce dernier cas, le paramètre clé - pour représenter la fraction volumique globale - est l'épaisseur d'une couche de résine que nous avons placée en surfaces (inférieure et supérieure) du stratifié. Au meilleur niveau de modélisation conduit dans ces travaux de thèse, la conductivité λ_z est prédite avec une erreur (différence simulation/expérimental) inférieure à 5%. Dans un dernier temps, les résultats expérimentaux de la matrice chargée de particules de cuivre ont été introduits dans le modèle numérique montrant ainsi que l'on pouvait arriver avec le matériau ultime à accroître la conductivité λ_z d'un facteur 1.5 pour 5% en volume de particules.

Perspectives

Nous avons constaté que dans la réalité les tailles des particules répondraient fréquemment à une distribution gaussienne. L'idée serait de prendre en compte cette distribution dans les modèles numériques développés au chapitre 2. Toujours à propos de la géométrie des particules, nous sommes conscients qu'un travail d'optimisation de la programmation relative à la dispersion aléatoire des ellipsoïdes dans le V.E.R. cubique est nécessaire afin de diminuer les durées de calculs. En parvenant à un tel but (réduction des temps de calculs) nous pourrions alors entreprendre une étude paramétrique sur le V.E.R. chargés de particules ellipsoïdales.

Pour les composites unidirectionnels, notre modélisation numérique est limitée à une fibre et un volume de matrice. Il serait intéressant de travailler sur un modèle plus proche de l'éprouvette fabriquée en enroulement filamentaire qui met en évidence des superpositions de mèches de fibres. Ceci même si nos résultats sens travers (expérimental/simulation numérique) en 2D sont plus que corrects.

La dernière perspective - qui sous entend un grand volume de travail - serait de produire effectivement les composites ultimes, c'est-à-dire avec fibres + particules dopantes dans la matrice polymère. Des confrontations avec les modèles pourraient alors être entreprises.

Bibliographie

- [1] J. C. Maxwell. *A treatise on electricity and magnetism*, volume 1. Clarendon Press Oxford, 1873.
- [2] D.M. Bigg and R.G. Barry. Thermal conductivity of heterophase polymer compositions. *Advances in Polymer Science*, 119 :1–30, 1995.
- [3] R. C. Progelhof, J. L. Throne, and R. R. Ruetsch. Methods for predicting the thermal conductivity of composite systems : A review. *Polymer Engineering & Science*, 16(9) :615–625, 1976.
- [4] G. S. Springer and S. W. Tsai. Thermal conductivities of unidirectional materials. *Journal of Composite Materials*, 1(2) :166–173, 1967.
- [5] A. Boudenne, L. Ibos, M. Fois, E. Gehin, and J.-C. Majeste. Thermophysical Properties of Polypropylene / Aluminium Composites. *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics*, 42(4) :722–732, 2004.
- [6] R. Kochetov, T. Andritsch, P. H F Morshuis, and J.J. Smit. Thermal and electrical behaviour of epoxy-based microcomposites filled with Al₂O₃ and SiO₂ particles. In *Electrical Insulation (ISEI), Conference Record of the 2010 IEEE International Symposium on*, pages 1–5, 2010.
- [7] D. W. Sundstrom and Y-D. Lee. Thermal conductivity of polymers filled with particulate solids. *Journal of Applied Polymer Science*, 16 :3159–3167, 1972.
- [8] Rajinder Pal. On the Lewis-Nielsen model for thermal/electrical conductivity of composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 39(5) :718 – 726, 2008.
- [9] M. Chikhi, B. Agoudjil, M. Haddadi, and A. Boudenne. Numerical modelling of the effective thermal conductivity of heterogeneous materials. *Journal of Thermoplastics Composite Material*, 26(3) :336–345, 2011.
- [10] Arnaud Alzina. *Comportement thermomécanique d'éléments de structures composites en milieu cryogénique extrême*. PhD thesis, Université Blaise Pascal - Clermont II, 2005.
- [11] R. L. Hamilton and O. K. Crosser. Thermal conductivity of heterogeneous two-component systems. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 1(3) :187–191, 1962.
- [12] S. C. Cheng and R. I. Vachon. The prediction of the thermal conductivity of two and three phase solid heterogeneous mixtures. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 12 :249–264, 1969.

- [13] G. T.-N. Tsao. Thermal conductivity of two-phase materials. *Industrial & Engineering Chemistry*, 53(5) :395–397, 1961.
- [14] T. B. Lewis and L. E. Nielsen. Dynamic mechanical properties of particulate-filled composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 14 :1449–1471, 1970.
- [15] R. Kochetov, A. V. Korobko, T. Andritsch, P. H. F. Morshuis, and S.J. Picken. Modelling of the thermal conductivity in polymer nanocomposites and the impact of the interface between filler and matrix. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 44 :395401, 2011.
- [16] Y. Benveniste and T. Miloh. The effective conductivity of composites with imperfect thermal contact at constituent interface. *International Journal of Engineering Science*, 24(9) :1537–1552, 1986.
- [17] Y. Benveniste. Effective thermal conductivity of composites with a thermal contact resistance between the constituents : Nondilute case. *Journal of Applied Physics*, 61(8) :2840–2843, 1987.
- [18] D.P.H. Hasselman and Lloyd F. Johnson. Effective thermal conductivity of composites with interfacial thermal barrier resistance. *Journal of Composite Materials*, 21(6) :508–515, 1987.
- [19] P. L. Kapitza. The study of heat transfer in helium II. *Journal of Physics*, 4 :181 – 210, 1941. Translation of the paper in the *Journal of Experimental and Theoretical Physics*.
- [20] W. A. Little. The transport of heat between dissimilar solids at low temperatures. *Canadian Journal of Physics*, 37(3) :334 – 349, 1959.
- [21] E. H. Kerner. The electrical conductivity of composite media. *Proceedings of the Physical Society. Section B*, 69(8) :802–807, 1956.
- [22] T. Mori and K. Tanaka. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica*, 21(5) :571 – 574, 1973.
- [23] H. Hatta and M. Taya. Thermal conductivity of coated filler composites. *Journal of Applied Physics*, 59(6) :1851–1860, 1986.
- [24] Y. Benveniste and T. Miloh. On the effective thermal conductivity of coated short-fiber composites. *Journal of Applied Physics*, 69(3) :1337–1344, 1991.
- [25] M. L. Dunn and M. Taya. The effective thermal conductivity of composites with coated reinforcement and the application to imperfect interfaces. *Journal of Applied Physics*, 73(4) :1711–1722, 1993.
- [26] D. S. Matsumoto, C. L.Jr. Reynolds, and A. C. Anderson. Thermal boundary resistance at metal-epoxy interfaces. *Physical Review B*, 16(8) :3303–3307, 1977.
- [27] K W Garrett and H M Rosenberg. The thermal conductivity of epoxy-resin / powder composite materials. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 7(9) :1247, 1974.
- [28] E. T. Swartz and R. O. Pohl. Thermal boundary resistance. *Rev. Mod. Phys.*, 61(3) :605–668, Jul 1989.
- [29] M. B. Bryning, D. E. Milkie, M. F. Islam, J. M. Kikkawa, and A. G. Yodh. Thermal conductivity and interfacial resistance in SWCNT epoxy composites. *Applied Physics Letters*, 87 :161909, 2005.

-
- [30] Q. Huang, L. Gao, Y. Liu, and J. Sun. Sintering and thermal properties of multiwalled carbon nanotube-BaTiO₃ composites. *Journal of Materials Chemistry*, 15(20) :1995–2001, 2005.
- [31] S. Ju and Z.Y. Li. Theory of thermal conductance in carbon nanotube composites. *Physics Letters A*, 353(2-3) :194 – 197, 2006.
- [32] Q. Z. Xue. Model for the effective thermal conductivity of carbon nanotube composites. *Nanotechnology*, 17(6) :1655–1660, 2006.
- [33] M. J. Biercuk, M. C. Llaguno, M. Radosavljevic, J. K. Hyun, A. T. Johnson, and J. E. Fisher. Carbon nanotube composites for thermal management. *Applied Physics Letters*, 80(15) :2767–2769, 2002.
- [34] D.P.H. Hasselman, K.Y. Donaldson, and J.R. Thomas. Effective thermal conductivity of uniaxial composite with cylindrically orthotropic carbon fibers and interfacial thermal barrier. *Journal of Composite Materials*, 27(6) :637–644, 1993.
- [35] S. T. Huxtable, D. G. Cahill, S. Shenogin, L. Xue, R. Ozisik, P. Barone, M. Usrey, M. S. Strano, G. Siddons, M. Shim, and P. Keblinski. Interfacial heat flow in carbon nanotube suspensions. *Nature Materials*, 2(11) :731–734, 2003.
- [36] O. M. Wilson, X. Hu, D. G. Cahill, and P. V. Braun. Colloidal metal particles as probes of nanoscale thermal transport in fluids. *Physical Review B*, 66 :224301, 2002.
- [37] E. T. Swartz and R. O. Pohl. Thermal resistance at interfaces. *Applied Physics Letters*, 51(26) :2200–2202, 1987.
- [38] M. D. Rintoul and S Torquato. Reconstruction of the structure of dispersions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 186 :467–476, 1997.
- [39] J. Segurado and J. Llorca. A numerical approximation to the elastic properties of sphere-reinforced composites. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 50 :2107–2121, 2002.
- [40] R. B. Barello and M. Lévesque. Comparison between the relaxation spectra obtained from homogenization models and finite elements simulation for the same composite. *International Journal of Solids and Structures*, 45 :850–867, 2008.
- [41] S. Kari, H. Berger, R. Rodriguez-Ramos, and U. Gabbert. Computational evaluation of effective material properties of composites reinforced by randomly distributed spherical particles. *Composite Structures*, 77 :223–231, 2007.
- [42] BorisD. Lubachevsky and FrankH. Stillinger. Geometric properties of random disk packings. *Journal of Statistical Physics*, 60(5-6) :561–583, 1990.
- [43] B. Lubachevsky, F. Stillinger, and E. N. Pinson. Disks vs Spheres : Constrating Properties of Random Packings. *Journal of Statistical Physics*, 64(3-4) :501–524, 1991.
- [44] A. Donev, S. Torquato, and F. Stillinger. Neighbor list collision-driven molecular dynamics simulation for nonspherical hard particles. i. algorithmic details. *Journal of Computational Physics*, 202 :737–764, 2005.
- [45] A. Donev, S. Torquato, and F. Stillinger. Neighbor list collision-driven molecular dynamics simulation for nonspherical hard particles. ii. applications to ellipses and ellipsoids. *Journal of Computational Physics*, 202 :765–793, 2005.

- [46] R. Rolfes and U. Hammerschmidt. Transverse thermal conductivity of CFRP laminates : A numerical and experimental validation of approximation formulae. *Composites Science and Technology*, 54(1) :45 – 54, 1995.
- [47] Qiong-Gong Ning and Tsu-Wei Chou. Closed-form solutions of the in-plane effective thermal conductivities of woven-fabric composites. *Composites Science and Technology*, 55(1) :41 – 48, 1995.
- [48] Qiong-Gong Ning, Tsu-Wei Chou, Qiong-Gong Ning, and Tsu-Wei Chou. A general analytical model for predicting the transverse effective thermal conductivities of woven fabric composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 29(3) :315 – 322, 1998.
- [49] J. C. Halpin and J. L. Kardos. The Halpin-Tsai equation - A review. *Polymer Engineering and Science*, 16(5) :344–352, 1976.
- [50] R.C. Wetherhold and J. Wang. Difficulties in the theories for predicting transverse thermal conductivity of continuous fiber composites. *Journal of Composite Materials*, 28(15) :1491–1498, 1994.
- [51] M. Grujicic, C. Zhao, E. Dusel, D. Morgan, R. Miller, and D. Beasley. Computational analysis of the thermal conductivity of the carbon/carbon composite materials. *Journal of Materials Science*, 41 :8244–8256, 2006.
- [52] A. Dasgupta and R.K. Agarwal. Orthotropic thermal conductivity of plain-weave fabric composites using a homogenization technique. *Journal of Composite Materials*, 26(18) :2736–2758, 1992.
- [53] Wen-Tai Hong and Nyan-Hwa Tai. Investigations on the thermal conductivity of composites reinforced with carbon nanotubes. *Diamond and Related Materials*, 17(7-10) :1577 – 1581, 2008. Proceedings of Diamond 2007, the 18th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide.
- [54] Tianle Zhou, Xin Wang, Xiaoheng Liu, and Dangsheng Xiong. Improved thermal conductivity of epoxy composites using a hybrid multi-walled carbon nanotube/micro-sic filler. *Carbon*, 48(4) :1171 – 1176, 2010.
- [55] S. Ganguli, A. K. Roy, and D. P. Anderson. Improved thermal conductivity for chemically functionalized exfoliated graphite/epoxy composites. *Carbon*, 46 :806 – 817, 2008.
- [56] P. Bujard. Thermal conductivity of boron nitride filled epoxy resins : temperature dependence and influence of sample preparation. In *Thermal Phenomena in the Fabrication and Operation of Electronic Components : I-THERM '88, InterSociety Conference on*, pages 41–49, 1988.
- [57] Silas E. Gustafsson. Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials. *Review of Scientific Instruments*, 62(3) :797–804, 1991.
- [58] Silas E. Gustafsson. Thermal conductivity, thermal diffusivity and specific heat of thin samples from transient measurements with hot disk sensors. *Review of Scientific Instruments*, 65(12) :3856–3859, 1994.

-
- [59] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, and G. L. Abbott. Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity and thermal conductivity. *Journal of Applied Physics*, 32 :1679–1684, 1961.
- [60] R. D. Cowan. Pulse method of measuring thermal diffusivity at high temperature. *Journal of Applied Physics*, 34(4) :926–927, 1963.
- [61] J. A. Cape and G. W. Lehman. Temperature and finite pulse-time effects in the flash method for measuring thermal diffusivity. *Journal of Applied Physics*, 34 :1909–1913, 1963.
- [62] Bruno Vergne. *Mise en forme de composites Nanotubes de carbone/alumine et modélisation de leur conductivité thermique*. PhD thesis, Université de Limoges, 2007.
- [63] M.J. Assael, K. D. Antoniadis, I. N. Metaxa, and D. Tzetzis. Measurements on the Enhancement of the Thermal Conductivity of an Epoxy Resin when Reinforced with Glass Fiber and Carbon Multiwalled Nanotubes. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 54(9) :2365–2370, 2009.
- [64] K. Sanada, Y. Tada, and Y. Shindo. Thermal conductivity of polymer composites with close-packed structure of nano and micro fillers. *Composites : Part A*, 40 :724 – 730, 2009.
- [65] Kai Yang and Mingyuan Gu. Enhanced thermal conductivity of epoxy nanocomposites filled with hybrid filler system of triethylenetetramine-functionalized multi-walled carbon nanotube/silane-modified nano-sized silicon carbide. *Composites : Part A*, 41 :215–221, 2010.
- [66] S. G. Miller, J. L. Bauer, M. J. Maryanski, P. J. Heimann, J. P. Barlow, J-M. Gosau, and R. E. Allred. Characterization of epoxy functionalized graphite nanoparticles and the physical properties of epoxy matrix nanocomposites. *Composites Science and Technology*, 70 :1120 – 1125, 2010.
- [67] Julia A. King, D. Lopez Gaxiola, B. A. Johnson, and J. M. Keith. Thermal conductivity of carbon-filled polypropylene-based resins. *Journal of Composite Materials*, 44(7) :839–855, 2010.
- [68] Z. Han, J. W. Wood, H. Herman, C. Zhang, and G.C. Stevens. Thermal properties of composites filled with different fillers. In *Electrical Insulation, 2008. ISEI 2008. Conference Record of the 2008 IEEE International Symposium on*, pages 497–501, 2008.
- [69] J.-P. Hong, S.-W. Yoon, T Hwang, J.-S Oh, S.-C. Hong, Y. Lee, and J.-D Nam. High thermal conductivity epoxy composites with bimodal distribution of aluminium nitride and boron nitride fillers. *Thermochimica Acta*, 537 :70–75, 2012.
- [70] G-W. Lee, M. Park, J. Kim, J. I. Lee, and H. G. Yoon. Enhanced thermal conductivity of polymer composites filled with hybrid filler. *Composites Part A*, 37 :727 – 734, 2006.
- [71] W. Zhou, S. Qi, Q. An, H. Zhao, and N. Liu. Thermal conductivity of boron nitride reinforced polyethylene composites. *Materials Research Bulletin*, 42 :1863–1873, 2007.
- [72] P. Zweifel and S.F. Fennessey. Thermal conductivity of reinforced composites for electrical applications. In *Electrical Insulation (ISEI), Conference Record of the 2010 IEEE International Symposium on*, pages 1–4, 2010.

- [73] Yunsheng Xu, D.D.L Chung, and Cathleen Mroz. Thermally conducting aluminum nitride polymer-matrix composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 32(12) :1749 – 1757, 2001.
- [74] F. El-Tantawy, K. Kamada, and H. Ohnabe. In situ network structure, electrical and thermal properties of conductive epoxy resin-carbon black composites for electrical heater applications. *Materials Letters*, 56(1-2) :112 – 126, 2002.
- [75] F F T Araujo and H M Rosenberg. The thermal conductivity of epoxy-resin/metal-powder composite materials from 1.7 to 300K. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 9(4) :665, 1976.
- [76] J. B. Henderson, J. A. Wiebelt, and M. R. Tant. A model for the thermal response of polymer composite materials with experimental verification. *Journal of Composite Materials*, 19 :579–595, 1985.
- [77] Dongrong Xu, Jiali Cui, Ravi Bansal, Xuejun Hao, Jun Liu, Weidong Chen, and Bradley S. Peterson. The ellipsoidal area ratio : an alternative anisotropy index for diffusion tensor imaging. *Magnetic Resonance Imaging*, 27 :311–323, 2009.
- [78] T. Yamane, S. Katayama, M. Todoki, and I. Hatta. The measurements of thermal conductivity of carbon fibers. *Journal of Wide Bandgap Materials*, 7 :294–305, 2000.
- [79] R.D Sweeting and X.L Liu. Measurement of thermal conductivity for fibre-reinforced composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 35(7–8) :933 – 938, 2004.
- [80] C. El Hage. *Modélisation du comportement élastique endommageable de matériaux composites à renfort tridimensionnel*. PhD thesis, Université de Technologie de Compiègne, 2006.
- [81] A. Hallal, R. Younes, F. Fardoun, and S. Nehme. Improved analytical model to predict the effective elastic properties of 2.5d interlock woven fabrics composite. *Composite Structures*, 94 :3009–3028, 2012.

Annexes

Annexe A

Programme de génération aléatoire de sphères dans un V.E.R. cubique 3D

Nous présentons ici le programme, développé sous JAVA, permettant de générer la dispersion aléatoire de particules sphériques ayant un rayon constant dans un V.E.R. cubique 3D. Ce programme est défini par trois classes :

- la classe *Parameter* définissant les paramètres géométriques relatifs au modèle ;
- la classe *Point* définissant les coordonnées des centres des particules ;
- la classe *MainSphere* qui génère la géométrie COMSOL

A.1 Classe *Point*

```
1  class Point{
2
3      private double x;
4      private double y;
5      private double z;
6
7
8      Point(double x, double y, double z){
9          this.x = x;
10         this.y = y;
11         this.z = z;
12     }
13
14
15     public double getX(){
16         return this.x;
17     }
18
19     public double getY(){
20         return this.y;
21     }
22
23     public double getZ(){
24         return this.z;
25     }
26 }
```

A.2 Classe *Parameter*

```

1  import java.io.BufferedReader;
2  import java.io.FileInputStream;
3  import java.io.InputStream;
4  import java.io.InputStreamReader;
5  import java.util.Scanner;
6
7  class Parameter {
8
9      private double volTot;
10     private double vf;
11     private double radSph;
12     private double volTotSph;
13     private double volSph;
14     private double nbreSphere;
15     private double cubeEdge;
16     private int    tentMax;
17
18
19     public Parameter() {
20         init();
21         // ... Total volume
22         this.volTot      = Math.pow(cubeEdge, 3);
23
24         // ... Total volume of spheres
25         this.volTotSph  = volTot*vf/100;
26
27         // ... Volume of one sphere
28         this.volSph     = 4*Math.PI*Math.pow(radSph, 3)/3;
29
30         // ... Number of spheres
31         this.nbreSphere = Math.floor(volTotSph/volSph+0.5);
32
33         System.out.println(volTotSph/volSph);
34         System.out.println(nbreSphere);
35
36         // ... Number of attempts for positionning spheres centres
37         this.tentMax    = 50;
38     }
39
40     // ... Input Data
41     private void init(){
42         Scanner sc      = new Scanner(System.in);
43         System.out.println("Which particles volume fraction? ... :");
44         this.vf         = sc.nextDouble();
45         System.out.println("Which particles radius? ...");
46         this.radSph     = sc.nextDouble();
47         System.out.println("Which cube edge value? ...");
48         this.cubeEdge   = sc.nextDouble();
49     }
50
51
52     public double getVolTot() {
53         return volTot; }
54
55     public double getVf() {
56         return vf; }
57
58     public double getRadSph() {
59         return radSph; }
60
61     public double getVolTotSph() {
62         return volTotSph; }
63
64     public double getVolSph() {

```

```

65         return volSph; }
66
67     public double getNbreSphere () {
68         return nbreSphere; }
69
70     public double getCubeEdge () {
71         return cubeEdge; }
72
73     public int getTentMax () {
74         return tentMax; }
75 }

```

A.3 Classe *MainSphere*

```

1  import java.util.ArrayList;
2  import java.util.List;
3  import java.io.BufferedReader;
4  import java.io.FileInputStream;
5  import java.io.InputStream;
6  import java.io.InputStreamReader;
7  import java.util.Scanner;
8
9  import com.comsol.model.*;
10 import com.comsol.model.util.*;
11
12
13 public class MainSphere {
14
15     public static Parameter param = new Parameter();
16
17     public static void main(String[] args) {
18         run();
19         ModelUtil.initStandalone(true);
20     }
21
22     public static Model run() {
23
24         //=====
25         // ... Model creation
26         //=====
27
28         System.out.println("Model creation...");
29         Model model = ModelUtil.create("Model");
30         model.modelPath("/home/benedicte/Documents/COMSOL/MainSphere");
31         model.modelNode().create("mod1");
32         System.out.println("Dimension Model...");
33         model.geom().create("geom1", 3);
34         System.out.println("Physics creation...");
35         model.physics().create("ht", "HeatTransfer", "geom1");
36         System.out.println("Study creation...");
37         model.study().create("std1");
38         model.study("std1").feature().create("stat", "Stationary");
39         model.study("std1").feature("stat").activate("ht", true);
40         model.sol().create("sol1");
41
42         List<String> nomsSpheres = new ArrayList<String>();
43
44         //=====
45         // ... Cubic R.V.E. creation
46         //=====
47
48         System.out.println("Cube creation...");
49         model.geom("geom1").lengthUnit("\u00b5m"); // ... Micrometre unit
50         model.geom("geom1").feature().create("blk1", "Block");
51         model.geom("geom1").feature("blk1").set("type", "solid");

```

```

52     model.geom("geom1").feature("blk1").setIndex("size",Double.toString(param.
53         getCubeEdge()),0);
54     model.geom("geom1").feature("blk1").setIndex("size",Double.toString(param.
55         getCubeEdge()),1);
56     model.geom("geom1").feature("blk1").setIndex("size",Double.toString(param.
57         getCubeEdge()),2);
58     model.geom("geom1").runAll();
59
60     //=====
61     //... Spheres centres creation
62     //=====
63
64     System.out.println("Creation of sphere centres ...");
65     List<Point> listPoint = new ArrayList<Point>();
66     int cpt = 0;
67     int cptError = 0;
68
69     for (int i = 0; i < param.getNbreSphere() ; i++,cpt++) {
70
71         if (cptError < param.getTentMax()){
72
73             //... Coordinates of spheres centres
74             double x = Math.random()*param.getCubeEdge();
75             double y = Math.random()*param.getCubeEdge();
76             double z = Math.random()*param.getCubeEdge();
77
78             //... Centres creation
79             model.geom("geom1").feature().create("pt"+cpt,"Point");
80             model.geom("geom1").feature("pt"+cpt).setIndex("p",Double.
81                 toString(x),0);
82             model.geom("geom1").feature("pt"+cpt).setIndex("p",Double.
83                 toString(y),1);
84             model.geom("geom1").feature("pt"+cpt).setIndex("p",Double.
85                 toString(z),2);
86
87             Point pt = new Point(x, y, z);
88
89             //... Check collision
90             if (isValid(listPoint, pt)){
91                 listPoint.add(pt);
92                 model.geom("geom1").feature().create("sph"+cpt,"
93                     Sphere");
94                 model.geom("geom1").feature("sph"+cpt).setIndex("pos
95                     ",Double.toString(x),0);
96                 model.geom("geom1").feature("sph"+cpt).setIndex("pos
97                     ",Double.toString(y),1);
98                 model.geom("geom1").feature("sph"+cpt).setIndex("pos
99                     ",Double.toString(z),2);
100                model.geom("geom1").feature("sph"+cpt).set("r",param
101                    .getRadSph());
102
103                model.geom("geom1").feature("pt"+cpt).active(false);
104
105                nomsSpheres.add("sph"+cpt) ;
106
107                cptError = 0;
108                System.out.println("cpt"+cpt);
109            } else
110            {
111                i--;
112                cptError++;
113                model.geom("geom1").feature().remove("pt"+
114                    cpt);
115                cpt--;
116            }
117        }
118    }

```

```

106
107     }
108 }
109
110
111 //=====
112 // ... Delete sphere parts outside R.V.E.
113 //=====
114 System.out.println("Delete parts outside R.V.E.");
115
116 double r = param.getRadSph() +1 ;
117
118
119 model.geom("geom1").feature().create("blk2","Block");
120 model.geom("geom1").feature("blk2").setIndex("pos",Double.toString(r
    *-1),0);
121 model.geom("geom1").feature("blk2").setIndex("pos",Double.toString
    (0),1);
122 model.geom("geom1").feature("blk2").setIndex("pos",Double.toString(r
    *-1),2);
123 model.geom("geom1").feature("blk2").setIndex("size",Double.toString(
    r),0);
124 model.geom("geom1").feature("blk2").setIndex("size",Double.toString(
    param.getCubeEdge()),1);
125 model.geom("geom1").feature("blk2").setIndex("size",Double.toString(
    r*2+param.getCubeEdge()),2);
126 model.geom("geom1").feature().create("dif1","Difference");
127 model.geom("geom1").feature("dif1").selection("input2").set(new
    String[]{"blk2"});
128
129 String [] nomsSt = new String[nomsSpheres.size()];
130 nomsSpheres.toArray(nomsSt);
131 model.geom("geom1").feature("dif1").selection("input").set(nomsSt);
132
133 model.geom("geom1").feature().create("blk3","Block");
134 model.geom("geom1").feature("blk3").setIndex("pos",Double.toString(
    param.getCubeEdge()),0);
135 model.geom("geom1").feature("blk3").setIndex("pos",Double.toString(r
    *-1),2);
136 model.geom("geom1").feature("blk3").setIndex("size",Double.toString(
    r),0);
137 model.geom("geom1").feature("blk3").setIndex("size",Double.toString(
    param.getCubeEdge()),1);
138 model.geom("geom1").feature("blk3").setIndex("size",Double.toString(
    r*2+param.getCubeEdge()),2);
139 model.geom("geom1").feature().create("dif2","Difference");
140 model.geom("geom1").feature("dif2").selection("input2").set(new
    String[]{"blk3"});
141 model.geom("geom1").feature("dif2").selection("input").set(new
    String[]{"dif1"});
142
143
144 model.geom("geom1").feature().create("blk4","Block");
145 model.geom("geom1").feature("blk4").setIndex("pos",Double.toString(r
    *-1),0);
146 model.geom("geom1").feature("blk4").setIndex("pos",Double.toString(r
    *-1),1);
147 model.geom("geom1").feature("blk4").setIndex("pos",Double.toString(r
    *-1),2);
148 model.geom("geom1").feature("blk4").setIndex("size",Double.toString(
    r*2+param.getCubeEdge()),0);
149 model.geom("geom1").feature("blk4").setIndex("size",Double.toString(
    r),1);
150 model.geom("geom1").feature("blk4").setIndex("size",Double.toString(
    r*2+param.getCubeEdge()),2);
151 model.geom("geom1").feature().create("dif3","Difference");

```

```

152     model.geom("geom1").feature("dif3").selection("input2").set(new
153         String []{ "blk4" });
154
155     model.geom("geom1").feature("dif3").selection("input").set(new
156         String []{ "dif2" });
157
158     model.geom("geom1").feature().create("blk5","Block");
159     model.geom("geom1").feature("blk5").setIndex("pos",Double.toString(r
160         *-1),0);
161     model.geom("geom1").feature("blk5").setIndex("pos",Double.toString(
162         param.getCubeEdge()),1);
163     model.geom("geom1").feature("blk5").setIndex("pos",Double.toString(r
164         *-1),2);
165     model.geom("geom1").feature("blk5").setIndex("size",Double.toString(
166         r*2+param.getCubeEdge()),0);
167     model.geom("geom1").feature("blk5").setIndex("size",Double.toString(
168         r),1);
169     model.geom("geom1").feature("blk5").setIndex("size",Double.toString(
170         r*2+param.getCubeEdge()),2);
171     model.geom("geom1").feature().create("dif4","Difference");
172     model.geom("geom1").feature("dif4").selection("input2").set(new
173         String []{ "blk5" });
174     model.geom("geom1").feature("dif4").selection("input").set(new
175         String []{ "dif3" });
176
177     model.geom("geom1").feature().create("blk6","Block");
178     model.geom("geom1").feature("blk6").setIndex("pos",Double.toString(r
179         *-1),2);
180     model.geom("geom1").feature("blk6").setIndex("size",Double.toString(
181         param.getCubeEdge()),0);
182     model.geom("geom1").feature("blk6").setIndex("size",Double.toString(
183         param.getCubeEdge()),1);
184     model.geom("geom1").feature("blk6").setIndex("size",Double.toString(
185         r),2);
186     model.geom("geom1").feature().create("dif5","Difference");
187     model.geom("geom1").feature("dif5").selection("input2").set(new
188         String []{ "blk6" });
189     model.geom("geom1").feature("dif5").selection("input").set(new
190         String []{ "dif4" });
191
192     model.geom("geom1").feature().create("blk7","Block");
193     model.geom("geom1").feature("blk7").setIndex("pos",Double.toString(
194         param.getCubeEdge()),2);
195     model.geom("geom1").feature("blk7").setIndex("size",Double.toString(
196         param.getCubeEdge()),0);
197     model.geom("geom1").feature("blk7").setIndex("size",Double.toString(
198         param.getCubeEdge()),1);
199     model.geom("geom1").feature("blk7").setIndex("size",Double.toString(
200         r),2);
201     model.geom("geom1").feature().create("dif6","Difference");
202     model.geom("geom1").feature("dif6").selection("input2").set(new
203         String []{ "blk7" });
204     model.geom("geom1").feature("dif6").selection("input").set(new
205         String []{ "dif5" });
206
207     model.geom("geom1").runAll();
208     //=====
209     //... Volume measurement
210     //=====
211     int [] numSp = new int [nomsSpheres.size ()] ;
212
213     for (int i = 1 ; i<=nomsSpheres.size () ; i++)
214     {
215         numSp[i-1] = i ;
216     }

```

```

196     model.geom("geom1").measure().selection().init(3);
197     model.geom("geom1").measure().selection().set("dif6", numSp);
198
199     double volSphModel = model.geom("geom1").measure().getVolume();
200
201     System.out.println("Spheres Volume ..." + volSphModel);
202
203
204     //=====
205     // ... Comparison between sphere volume model and sphere volume
206     // attempt
207     //=====
208     if (volSphModel < (param.getVolTot()*(param.getVf()-0.1)/100)){
209
210         double nbSphAdd = Math.floor((param.getVolTot()*(param.getVf()
211             (+0.1)/100 - volSphModel)/param.getVolSph()+0.5);
212         int NbSphAdd = (int)nbSphAdd;
213         System.out.println("We need to add "+nbSphAdd+" spheres");
214
215         cptError = 0;
216
217         //
218         //=====
219         // ... If sphere volume model < sphere volume attempt we add
220         // spheres
221         // ... New Point definition and new spheres creation
222         //
223         //=====
224
225         System.out.println("New points definition");
226
227         for (int i = 0 ; i < NbSphAdd ; i++ , cpt++) {
228
229             if (cptError <= param.getTentMax()){
230
231                 double xNew = Math.random()*(param.
232                     getCubeEdge()-2*param.getRadSph()+
233                     param.getRadSph());
234                 double yNew = Math.random()*(param.
235                     getCubeEdge()-2*param.getRadSph()+
236                     param.getRadSph());
237                 double zNew = Math.random()*(param.
238                     getCubeEdge()-2*param.getRadSph()+
239                     param.getRadSph());
240
241                 model.geom("geom1").feature().create("pt"+
242                     cpt, "Point");
243                 model.geom("geom1").feature("pt"+cpt).
244                     setIndex("p", Double.toString(xNew), 0);
245                 model.geom("geom1").feature("pt"+cpt).
246                     setIndex("p", Double.toString(yNew), 1);
247                 model.geom("geom1").feature("pt"+cpt).
248                     setIndex("p", Double.toString(zNew), 2);
249
250                 Point point = new Point(xNew, yNew, zNew);
251
252                 if (isValid(listPoint , point)){
253                     listPoint.add(point);
254
255                     System.out.println("New sphere " +
256                         cpt);

```


Annexe B

Linéarisation du modèle 2D : Explicitation des équations

Nous explicitons ici le système d'équations permettant de trouver les points M_1 et M_2 par la méthode de Newton en fonction des positions des centres des ellipses, de leur angle d'orientation α_i ($i = 1$ ou 2) et de leurs dimensions. Toutes ces expressions ont été calculées à l'aide de MAPLE.

$$J(X_k)(X_{k+1} - X_k) = -F(X_k) \quad (\text{B.1})$$

$$X_{k+1} = X_k - J'(X_k)F(X_k) \quad (\text{B.2})$$

avec

$$F(X_k) = \begin{bmatrix} F_1(X_k) \\ F_2(X_k) \\ F_3(X_k) \\ F_4(X_k) \end{bmatrix} \quad (\text{B.3})$$

$$F_1(X_k) = \left(2 \cos \alpha_1 \frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} - 2 \sin \alpha_1 \frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right) (y_{2k} - y_{1k}) - \left(2 \sin \alpha_1 \frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} + 2 \cos \alpha_1 \frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right) (x_{2k} - x_{1k})$$

$$\begin{aligned}
 F_2(X_k) = & \left(2 \cos \alpha_1 \frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} - 2 \sin \alpha_1 \right. \\
 & \left. \frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right) \\
 & \left(2 \sin \alpha_2 \frac{\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{a^2} + 2 \cos \alpha_2 \frac{-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right) \\
 - & \left(2 \sin \alpha_1 \frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} + 2 \cos \alpha_1 \frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right) \\
 & \left(2 \cos \alpha_2 \frac{\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{a^2} - 2 \sin \alpha_2 \frac{-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right)
 \end{aligned}$$

$$F_3(X_k) = \frac{[\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]^2}{a^2} + \frac{[-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]^2}{b^2} - 1$$

$$F_4(X_k) = \frac{[\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]^2}{a^2} + \frac{[-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]^2}{b^2} - 1$$

$$J(X_k) = \begin{bmatrix} J_{11} & J_{12} & J_{13} & 0 \\ J_{21} & J_{22} & J_{23} & 0 \\ J_{31} & J_{32} & 0 & J_{34} \\ J_{41} & J_{42} & 0 & J_{44} \end{bmatrix} \quad (\text{B.4})$$

La matrice J est obtenue en effectuant les dérivées partielles de F par rapport aux inconnues.

$$J_{i,j} = \partial_{X_j} F_i \quad (\text{B.5})$$

$$\begin{aligned}
 J(1,1) = & 2 \left(\frac{\cos^2 \alpha_1}{a^2} + \frac{\sin^2 \alpha_1}{b^2} (y_{2k} - y_{1k}) \right) - 2 \left(\frac{\cos \alpha_1 \sin \alpha_1}{a^2} - \frac{\sin \alpha_1 \cos \alpha_1}{b^2} (x_{2k} - x_{1k}) \right) \\
 + & 2 \left(\frac{\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{a^2} \right) + 2 \left(\frac{-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 J(1,2) = & 4 \left(\frac{\cos^2 \alpha_1}{a^2} + \frac{\sin^2 \alpha_1}{b^2} \right) \\
 & \left(\frac{\sin \alpha_2 [\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{a^2} + \frac{\cos \alpha_2 [-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{b^2} \right)
 \end{aligned}$$

$$-4 \left(\frac{\cos \alpha_1 \sin \alpha_1}{a^2} - \frac{\sin \alpha_1 \cos \alpha_1}{b^2} \right) \left(\frac{\cos \alpha_2 [\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{a^2} + \frac{\sin \alpha_2 [-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{b^2} \right)$$

$$J(1, 3) = 2 \left(\frac{\cos \alpha_1 [\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{a^2} - \frac{\sin \alpha_1 [-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{b^2} \right)$$

$$J(2, 1) = 2 \left(\frac{\cos \alpha_1 \sin \alpha_1}{a^2} - \frac{\sin \alpha_1 \cos \alpha_1}{b^2} \right) (y_{2k} - y_{1k}) - 2 \left(\frac{\cos \alpha_1 [\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{a^2} \right) + 2 \left(-\frac{\sin \alpha_1 [-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{b^2} \right) - 2 \left(\frac{\sin^2 \alpha_1}{a^2} + \frac{\cos^2 \alpha_1}{b^2} \right) (x_{2k} - x_{1k})$$

$$J(2, 2) = 4 \left(\frac{\cos \alpha_1 \sin \alpha_1}{a^2} - \frac{\sin \alpha_1 \cos \alpha_1}{b^2} \right) \left(\frac{\sin \alpha_2 [\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{a^2} + \frac{\cos \alpha_2 [-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{b^2} \right) - 4 \left(\frac{\sin^2 \alpha_1}{a^2} + \frac{\cos^2 \alpha_1}{b^2} \right) \left(\frac{\cos \alpha_2 [\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{a^2} + \frac{\sin \alpha_2 [-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{b^2} \right)$$

$$J(2, 3) = -J(3, 1) = \frac{\sin \alpha_1 [\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{a^2} + \frac{\cos \alpha_1 [-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{b^2}$$

$$J(3, 2) = 4 \left(\frac{\cos \alpha_1 [\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{a^2} - \frac{\sin \alpha_1 [-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{b^2} \right) - 4 \left(\frac{\sin \alpha_1 [\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{a^2} + \frac{\cos \alpha_1 [-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{b^2} \right) \left[\frac{\cos^2 \alpha_2}{a^2} + \frac{\sin^2 \alpha_2}{b^2} \right]$$

$$J(3, 4) = 2 \left(\frac{\cos \alpha_2 [\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{a^2} \right)$$

$$+ \frac{\sin \alpha_2 [-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{b^2}$$

$$J(4, 1) = 2 \left(\frac{\cos \alpha_1 [\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{a^2} - \frac{\sin \alpha_1 [-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{b^2} \right)$$

$$J(4, 2) = 4 \left(\frac{\cos \alpha_1 [\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{a^2} - \frac{\sin \alpha_1 [-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{b^2} \right) \left(\frac{\sin^2 \alpha_2}{a^2} + \frac{\cos^2 \alpha_2}{b^2} \right) - 4 \left(\frac{\sin \alpha_1 [\cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{a^2} + \frac{\cos \alpha_1 [-\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})]}{b^2} \right) \left(\frac{\cos \alpha_2 \sin \alpha_2}{a^2} - \frac{\sin \alpha_2 \cos \alpha_2}{b^2} \right)$$

$$J(4, 4) = 2 \left(\frac{\sin \alpha_2 [\cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{a^2} + \frac{\cos \alpha_2 [-\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})]}{b^2} \right)$$

Annexe C

Programme de génération aléatoire d'ellipses dans un V.E.R. carré 2D

Nous présentons ici le programme, développé sous OCTAVE, permettant de générer la dispersion aléatoire de particules elliptiques, ayant un demi grand axe b et un demi petit axe a constants, dans un V.E.R. carré 2D. Nous avons défini trois fonctions :

- la fonction *parameter* qui rassemble les paramètres géométriques relatifs au modèle ;
- la fonction *Newton* qui permet de déterminer les coordonnées x_1, y_1, x_2, y_2 des points M_1 et M_2 ;
- la fonction *collision* qui vérifie la distance entre les points M_1 et M_2 ;
- la fonction **MainEllipse** qui génère le tableau regroupant les coordonnées des centres des ellipses ainsi que leur orientation.

C.1 Fonction *parameter*

```

1 function [nbEllip , attemptM , surfTotEllip , surfEllip] = parameter(a,b,L,vp)
2
3 if nargin ~= 4
4     error('This function attempts 4 arguments')
5 endif
6
7 surfTot = L^2;
8 surfTotEllip    = surfTot*vp/100;
9 surfEllip      = pi()*a*b;
10 nbEllip = surfTotEllip/surfEllip;
11 nbEllip = round(nbEllip);
12 attemptM      = 700;
13
14 return
15
16 endfunction

```

C.2 Fonction *Newton*

```

1 function [X1,xx1,yy1,xx2,yy2,t1,t3,t6,t8,t36,t39] = Newton(X0,XNull,x10,y10,x20,y20,
2     i,NumE,alpha,a,b)

```

```

3
4 x1 = X0(1, :);
5 y1 = X0(2, :);
6 x2 = X0(3, :);
7 y2 = X0(4, :);
8
9 t1 = cos(alpha(i, :)); % ... t1 = cos(alpha1);
10 t2 = t1*t1;
11 t3 = a*a; % ... t3 = a1*a1;
12 t4 = 1/t3;
13 t6 = sin(alpha(i, :)); % ... t6 = sin(alpha1);
14 t7 = t6*t6;
15 t8 = b*b; % ... t8 = b1*b1;
16 t9 = 1/t8;
17 t11 = t2*t4+t7*t9;
18 t18 = t1*t4*t6-t6*t9*t1;
19 t36 = cos(alpha(NumE, :)); % ... t36 = cos(alpha2);
20 t39 = sin(alpha(NumE, :)); % ... t39 = sin(alpha2);
21 t43 = t3; % ... t43 = a2*a2;
22 t44 = 1/t43;
23 t50 = t8; % ... t50 = b2*b2;
24 t51 = 1/t50;
25 t69 = t7*t4+t2*t9;
26 t80 = t36*t44*t39-t39*t51*t36;
27 t82 = t36*t36;
28 t84 = t39*t39;
29
30
31 t12 = y2-y1;
32 t19 = x2-x1;
33 t21 = x1-x10;
34 t23 = y1-y10;
35 t37 = x2-x20;
36 t40 = y2-y20;
37
38 t26 = (t1*t21+t6*t23)*t4;
39 t27 = t26*t6;
40 t32 = (-t6*t21+t1*t23)*t9;
41 t33 = t32*t1;
42 t45 = (t36*t37+t39*t40)*t44;
43 t52 = (-t39*t37+t36*t40)*t51;
44 t54 = t45*t39+t52*t36;
45 t58 = t45*t36-t52*t39;
46 t61 = t26*t1;
47 t62 = t32*t6;
48 t63 = t61-t62;
49 t75 = t27+t33;
50
51
52
53 %=====
54 %... F(X)
55 %=====
56 F(:, 1) = (2.0*(t1*(x1-x10)+t6*(y1-y10))/t3*t1-2.0*(-t6*(x1-x10)+t1*(y1-y10))/t8*t6)
*(y2-y1)-(2.0*(t1*(x1-x10)+t6*(y1-y10))/t3*t6+2.0*(-t6*(x1-x10)+t1*(y1-y10))/t8*
t1)*(x2-x1);
57
58
59 F(:, 2) = (2.0*(t1*(x1-x10)+t6*(y1-y10))/t3*t1-2.0*(-t6*(x1-x10)+t1*(y1-y10))/t8*t6)
*(2.0*(t36*(x2-x20)+t39*(y2-y20))/t43*t39+2.0*(-t39*(x2-x20)+t36*(y2-y20))/t50*
t36)-(2.0*(t1*(x1-x10)+t6*(y1-y10))/t3*t6+2.0*(-t6*(x1-x10)+t1*(y1-y10))/t8*t1)
*(2.0*(t36*(x2-x20)+t39*(y2-y20))/t43*t36-2.0*(-t39*(x2-x20)+t36*(y2-y20))/t50*
t39);
60
61

```

```

62 F(:,3) = power(t1*(x1-x10)+t6*(y1-y10),2.0)/t3+power(-t6*(x1-x10)+t1*(y1-y10),2.0)/
    t8-1.0;
63
64
65 F(:,4) = power(t36*(x2-x20)+t39*(y2-y20),2.0)/t43+power(-t39*(x2-x20)+t36*(y2-y20)
    ,2.0)/t50-1.0;
66
67
68 %=====
69 %... J(X)
70 %=====
71 J(1,1) = 2.0*t11*t12-2.0*t18*t19+2.0*t27+2.0*t33;
72 J(1,2) = 4.0*t11*t54-4.0*t18*t58;
73 J(1,3) = 2.0*t63;
74 J(1,4) = 0.0;
75 J(2,1) = 2.0*t18*t12-2.0*t61+2.0*t62-2.0*t69*t19;
76 J(2,2) = 4.0*t18*t54-4.0*t69*t58;
77 J(2,3) = 2.0*t75;
78 J(2,4) = 0.0;
79 J(3,1) = -2.0*t75;
80 J(3,2) = 4.0*t63*t80-4.0*t75*(t82*t44+t84*t51);
81 J(3,3) = 0.0;
82 J(3,4) = 2.0*t58;
83 J(4,1) = 2.0*t63;
84 J(4,2) = 4.0*t63*(t84*t44+t82*t51)-4.0*t75*t80;
85 J(4,3) = 0.0;
86 J(4,4) = 2.0*t54;
87
88
89 %=====
90 %... Comatrix
91 %=====
92 C(1,1) = J(2,3)*(J(4,2)*J(3,4)-J(3,2)*J(4,4));
93 C(1,2) = J(2,3)*(J(3,1)*J(4,4)-J(4,1)*J(3,4));
94 C(1,3) = -J(3,4)*(J(2,1)*J(4,2)-J(4,1)*J(2,2))+J(4,4)*(J(2,1)*J(3,2)-J(3,1)*J(2,2))
    ;
95 C(1,4) = -J(2,3)*(J(3,1)*J(4,2)-J(4,1)*J(3,2));
96 C(2,1) = J(1,3)*(J(3,2)*J(4,4)-J(4,2)*J(3,4));
97 C(2,2) = -J(1,3)*(J(3,1)*J(4,4)-J(4,1)*J(3,4));
98 C(2,3) = J(3,4)*(J(1,1)*J(4,2)-J(4,1)*J(1,2))-J(4,4)*(J(1,1)*J(3,2)-J(3,1)*J(1,2));
99 C(2,4) = J(1,3)*(J(3,1)*J(4,2)-J(4,1)*J(3,2));
100 C(3,1) = J(4,4)*(J(1,2)*J(2,3)-J(2,2)*J(1,3));
101 C(3,2) = -J(4,4)*(J(1,1)*J(2,3)-J(2,1)*J(1,3));
102 C(3,3) = J(4,4)*(J(1,1)*J(2,2)-J(2,1)*J(1,2));
103 C(3,4) = -J(1,3)*(J(2,1)*J(4,2)-J(4,1)*J(2,2))+J(2,3)*(J(1,1)*J(4,2)-J(4,1)*J(1,2))
    ;
104 C(4,1) = -J(3,4)*(J(1,2)*J(2,3)-J(2,2)*J(1,3));
105 C(4,2) = J(3,4)*(J(1,1)*J(2,3)-J(2,1)*J(1,3));
106 C(4,3) = -J(3,4)*(J(1,1)*J(2,2)-J(2,1)*J(1,2));
107 C(4,4) = J(1,3)*(J(2,1)*J(3,2)-J(3,1)*J(2,2))-J(2,3)*(J(1,1)*J(3,2)-J(3,1)*J(1,2));
108
109
110
111 %=====
112 %... Determinant
113 %=====
114
115 det = J(3,4)*C(3,4)+J(4,4)*C(4,4);
116
117 %=====
118 %... Transpose Comatrix
119 %=====
120 for m=1:4
121     for n=1:4
122
123         CT(m,n) = C(n,m);

```

```

124         endfor
125 endfor
126
127 %=====
128 % ... Solve system to determine new X1
129 %=====
130
131 X1 = XNull;
132 for m=1:1:4
133     for j=1:1:4
134
135         JI(m,j) = (1/det)*CT(m,j);
136
137         X1(m,:) = X0(m,:)-JI(m,j)*F(:,m);
138
139     endfor
140
141 endfor
142
143 xx1 = X0(1,:)- X1(1,:);
144 yy1 = X0(2,:)- X1(2,:);
145 xx2 = X0(3,:)- X1(3,:);
146 yy2 = X0(4,:)- X1(4,:);
147
148
149 endfunction

```

C.3 Fonction *collision*

```

1 function [col]=collision(pos,alpha,i,a,b)
2
3 %
4 if nargin ~= 5
5     error('This function attempts 5 arguments')
6 endif
7
8
9 NumE    = 1;                % ... Ellipse Number
10 col    = 0;
11
12 %=====
13 % ... Collision
14 %=====
15
16 if i >= 2
17     while NumE < i
18
19         if sqrt((pos(i,1)-pos(NumE,1))^2 + (pos(i,2)-pos(NumE,2))^2) < 2*b
20
21             x10    = pos(i,1);    % ... Ellipse centre 1
22             y10    = pos(i,2);
23             x20    = pos(NumE,1); % ... Ellipse centre 2
24             y20    = pos(NumE,2);
25             xm     = (x10 + x20)/2;
26             ym     = (y10 + y20)/2;
27
28             X1     = [xm;ym;xm;ym];
29             XNull  = [0;0;0;0];
30
31             Err    = 0.01;        % ... Error tolerance
32
33
34
35
36

```



```

37         do
38
39             X0                                     = X1;
40
41             [X1,xx1,yy1,xx2,yy2,t1,t3,t6,t8,t36,t39] = Newton(X0
42                 ,XNull,x10,y10,x20,y20,i,NumE,alpha,a,b)
43
44             until (abs(xx1)<Err && abs(yy1)<Err && abs(xx2)<Err && abs(
45                 yy2)<Err)
46
47             xm1 = X1(1,:);           %... x coordinate M1
48             ym1 = X1(2,:);           %... y coordinate M1
49             xm2 = X1(3,:);           %... x coordinate M2
50             ym2 = X1(4,:);           %... y coordinate M2
51
52             %=====
53             %... Check if M1 is on E2 and M2 on E1
54             %=====
55
56             E1 = power((t1*(xm2-x10)+t6*(ym2-y10)),2.0)/power(t3
57                 ,2.0) + power((-t6*(xm2-x10)+t1*(ym2-y10)),2.0)/power(t8
58                 ,2.0)-1;
59             printf('E1: %3.2f\n', E1);
60             E2 = power((t36*(xm1-x20)+t39*(ym1-y20)),2.0)/power(t3
61                 ,2.0) + power((-t39*(xm1-x20)+t36*(ym1-y20)),2.0)/power(
62                 t8,2.0)-1;
63             printf('E2: %3.2f\n', E2);
64
65             %=====
66             %... Normal M1 - Normal M2
67             %=====
68
69             Nx1 = 2.0*(t1*(xm1-x10)+t6*(ym1-y10))*t1 - 2.0/9.0*(-t6*(
70                 xm1-x10)+t1*(ym1-y10))*t6;
71             Ny1 = 2.0*(t1*(xm1-x10)+t6*(ym1-y10))*t6 + 2.0/9.0*(-t6*(
72                 xm1-x10)+t1*(ym1-y10))*t1;
73
74             Nx2 = 2.0*(t36*(xm2-x20)+t39*(ym2-y20))*t36 - 2.0/9.0*(-
75                 t39*(xm2-x20)+t36*(ym2-y20))*t39;
76             Ny2 = 2.0*(t36*(xm2-x20)+t39*(ym2-y20))*t39 + 2.0/9.0*(-
77                 t39*(xm2-x20)+t36*(ym2-y20))*t36;
78
79             NN = Nx1*Ny2-Ny1*Nx2;
80             NNM = Nx1*(ym2-ym1)-Ny1*(xm2-xm1);
81
82             %NN = Nx1*Nx2+Ny1*Ny2;
83
84             if ((NN != 0) && (NNM != 0) && ((E1<0) || (E2<0)))
85                 %if ((E1<0) || (E2<0))
86
87                 col = 1;
88                 printf('collision between E%3.2f(current) and E%3.2f
89                     \n', i, NumE);
90
91             else
92                 printf('xm1 %3.2f \nym1 %3.2f \nxm2 %3.2f \nym2 %3.2
93                     f\n',xm1,ym1,xm2,ym2);
94
95             endif
96
97         return
98     endif

```

```

91
92     NumE = NumE+1;
93
94     endwhile
95
96 endif
97
98 endfunction

```

C.4 Fonction *MainEllipse*

```

1  %=====
2  %... Input
3  %=====
4  t0 = cputime;
5  vp      = input('Particles volume fraction? ... :');
6
7  printf('Ellipsoid dimensions: b >= a >= 1\n');
8
9  %a      = input('Ellipsoid dimension a ? ... :');
10 %b      = input('Ellipsoid dimension b ? ... :');
11
12
13         = input('RVE edge length? ... :');
14
15 [nbEllip , attemptM , surfTotEllip , surfEllip] = parameter(a,b,L,vp);
16
17
18 n      = 1;
19
20 printf('Ellipse Number:... %3.2f\n',nbEllip);
21
22 while n <= nbEllip
23
24     pos(n,:)      = rand(1,2)*(L-2*b)+b;
25
26     alpha(n,:)    = rand(1,1)*2*pi();
27
28     [col]         = collision(pos,alpha,n,a,b);
29
30
31
32     if col == 1
33
34         if attempt < attemptM
35             attempt = attempt + 1;
36             printf(' +%3.1fA\n', attempt);
37
38         else
39             printf('Error: Maximum attempts reached - Ellipse Number:...
40                 %3.2f',n);
41
42             attempt = 1;
43             n--;
44         endif
45
46     else
47         attempt = 1;
48         n++;
49     endif
50
51 endwhile

```

Annexe D

Linéarisation du modèle 3D : Explicitation des équations

Tout comme pour le modèle 2D, nous avons utilisé MAPLE pour déterminer les expressions analogues en 2D décrites ci-dessous.

$$J(X_k)(X_{k+1} - X_k) = -F(X_k) \quad (\text{D.1})$$

$$X_{k+1} = X_k - J'(X_k)F(X_k) \quad (\text{D.2})$$

avec

$$F(X_k) = \begin{bmatrix} F_1(X_k) \\ F_2(X_k) \\ F_3(X_k) \\ F_4(X_k) \\ F_5(X_k) \\ F_6(X_k) \end{bmatrix} \quad (\text{D.3})$$

$$F_1(X_k) = F_{11} + F_{12}$$

$$F_{11} = \left[2 \cos \beta_1 \cos \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\ \left. + 2 \sin \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\ \left. + 2 \sin \beta_1 \cos \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] (y_{2k} - y_{1k})$$

$$F_{12} = - \left[-2 \cos \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\ \left. + 2 \cos \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\ \left. - 2 \sin \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] (x_{2k} - x_{1k})$$

$$F_2(X_k) = F_{21} + F_{22}$$

$$F_{21} = - \left[-2 \cos \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\ \left. + 2 \sin \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\ \left. + 2 \sin \beta_1 \cos \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] \\ \left[-2 \cos \beta_2 \sin \alpha_2 \frac{\cos \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2 (z_2 - z_{20})}{a^2} \right. \\ \left. + 2 \cos \alpha_2 \frac{\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right. \\ \left. - 2 \sin \beta_2 \sin \alpha_2 \frac{\sin \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2 (z_2 - z_{20})}{c^2} \right]$$

$$F_{22} = \left[2 \cos \beta_1 \cos \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\ \left. + 2 \cos \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1 (y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\ \left. - 2 \sin \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1 (z_1 - z_{10})}{c^2} \right] \\ \left[2 \cos \beta_2 \cos \alpha_2 \frac{\cos \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2 (z_2 - z_{20})}{a^2} \right. \\ \left. + 2 \sin \alpha_2 \frac{\sin \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2 (y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right. \\ \left. + 2 \sin \beta_2 \cos \alpha_2 \frac{\sin \beta_2 \cos \alpha_2 (x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2 (y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2 (z_2 - z_{20})}{c^2} \right]$$

$$F_3(X_k) = \left[2 \cos \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1 (x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1 (y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1 (z_1 - z_{10})}{a^2} \right]$$

$$\begin{aligned}
 & +2 \cos \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1(y_{1k} - y_{10})}{b^2} \\
 -2 \sin \beta_1 \sin \alpha_1 & \left. \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1(z_1 - z_{10})}{c^2} \right] (z_2 - z_1) \\
 & - \left[-2 \sin \beta_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1(z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \left. +2 \cos \beta_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1(z_1 - z_{10})}{c^2} \right] (y_{2k} - y_{1k})
 \end{aligned}$$

$$F_4(X_k) = F_{41} + F_{42}$$

$$\begin{aligned}
 F_{41} = & \left[2 \cos \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1(z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \left. +2 \cos \alpha_1 \frac{\sin \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1(y_{1k} - y_{10})}{b^2} \right. \\
 & \left. -2 \sin \beta_1 \sin \alpha_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1(z_1 - z_{10})}{c^2} \right] \\
 & \left[2 \sin \beta_2 \frac{\cos \beta_2 \cos \alpha_2(x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2(y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2(z_2 - z_{20})}{a^2} \right. \\
 & \left. +2 \cos \beta_2 \frac{\sin \beta_2 \cos \alpha_2(x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2(y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2(z_2 - z_{20})}{c^2} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 F_{42} = & - \left[-2 \sin \beta_1 \frac{\cos \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1(z_1 - z_{10})}{a^2} \right. \\
 & \left. +2 \cos \beta_1 \frac{\sin \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1(z_1 - z_{10})}{c^2} \right] \\
 & \left[-2 \cos \beta_2 \sin \alpha_2 \frac{\cos \beta_2 \cos \alpha_2(x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2(y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2(z_2 - z_{20})}{a^2} \right. \\
 & \left. +2 \cos \alpha_2 \frac{\sin \alpha_2(x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2(y_{2k} - y_{20})}{b^2} \right. \\
 & \left. -2 \sin \beta_2 \sin \alpha_2 \frac{\sin \beta_2 \cos \alpha_2(x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2(y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2(z_2 - z_{20})}{c^2} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 F_5(X_k) = & \frac{(\cos \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \cos \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) - \sin \beta_1(z_1 - z_{10}))^2}{a^2} \\
 & + \frac{(\sin \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) + \cos \alpha_1(y_{1k} - y_{10}))^2}{b^2} \\
 & + \frac{(\sin \beta_1 \cos \alpha_1(x_{1k} - x_{10}) - \sin \beta_1 \sin \alpha_1(y_{1k} - y_{10}) + \cos \beta_1(z_1 - z_{10}))^2}{c^2} - 1
 \end{aligned}$$

$$F_6(X_k) = \frac{(\cos \beta_2 \cos \alpha_2(x_{2k} - x_{20}) - \cos \beta_2 \sin \alpha_2(y_{2k} - y_{20}) - \sin \beta_2(z_2 - z_{20}))^2}{a^2} + \frac{(\sin \alpha_2(x_{2k} - x_{20}) + \cos \alpha_2(y_{2k} - y_{20}))^2}{b^2} + \frac{(\sin \beta_2 \cos \alpha_2(x_{2k} - x_{20}) - \sin \beta_2 \sin \alpha_2(y_{2k} - y_{20}) + \cos \beta_2(z_2 - z_{20}))^2}{c^2} - 1$$

$$J(X_k) = \begin{bmatrix} J_{11} & J_{12} & J_{13} & J_{14} & J_{15} & 0 \\ J_{21} & J_{22} & J_{23} & J_{24} & J_{25} & 0 \\ J_{31} & J_{32} & J_{33} & J_{34} & J_{35} & 0 \\ J_{41} & J_{42} & 0 & J_{44} & 0 & J_{46} \\ J_{51} & J_{52} & J_{53} & J_{54} & 0 & J_{56} \\ 0 & J_{62} & J_{63} & 0 & 0 & J_{66} \end{bmatrix} \quad (\text{D.4})$$

$$J(1, 1) = 2.0 * t_{20} * t_{21} - 2.0 * t_{31} * t_{32} - t_{45} + t_{51} - t_{60}$$

$$J(1, 2) = 4.0 * t_{20} * t_{96} - 4.0 * t_{31} * t_{101}$$

$$J(1, 3) = 2.0 * t_{31} * t_{104} - t_{111}$$

$$J(1, 4) = 4.0 * t_{31} * t_{115} - t_{117}$$

$$J(1, 5) = 2.0 * t_{122}$$

$$J(1, 6) = 0.0$$

$$J(2, 1) = 2.0 * t_{31} * t_{21} - 2.0 * t_{119} - 2.0 * t_{120} - 2.0 * t_{121} - 2.0 * t_{132} * t_{32}$$

$$J(2, 2) = 4.0 * t_{31} * t_{96} - 4.0 * t_{132} * t_{101}$$

$$J(2, 3) = 2.0 * t_{132} * t_{104} - 2.0 * t_{141} * t_{21} - 2.0 * t_{143} + 2.0 * t_{145}$$

$$J(2, 4) = 4.0 * t_{132} * t_{115} - 4.0 * t_{141} * t_{96}$$

$$J(2, 5) = 2.0 * t_{151}$$

$$J(2, 6) = 0.0$$

$$J(3, 1) = t_{111} - 2.0 * t_{141} * t_{32}$$

$$J(3, 2) = t_{117} - 4.0 * t_{141} * t_{101}$$

$$J(3, 3) = 2.0 * t_{141} * t_{104} + t_{45} - t_{51} + t_{60} - 2.0 * t_{159} * t_{21}$$

$$J(3, 4) = 4.0 * t_{141} * t_{115} - 4.0 * t_{159} * t_{96}$$

$$J(3, 5) = 2.0 * t_{165}$$

$$J(3, 6) = 0.0$$

$$J(4, 1) = -2.0 * t_{151}$$

$$J(4, 2) = 4.0 * t_{122} * t_{176} - 4.0 * t_{151} * (t_{166} * t_{178} * t_7 + t_{181} * t_{12} + t_{172} * t_{178} * t_{18})$$

$$J(4, 3) = 0.0$$

$$J(4, 4) = t_{193} - 4.0 * t_{165} * t_{176}$$

$$J(4, 5) = 0.0$$

$$J(4, 6) = 2.0 * t_{101}$$

$$J(5, 1) = 2.0 * t_{122}$$

$$J(5, 2) = 4.0 * t_{122} * t_{201} - 4.0 * t_{151} * t_{176}$$

$$J(5, 3) = -2.0 * t_{165}$$

$$J(5, 4) = 4.0 * t_{151} * t_{207} - 4.0 * t_{165} * t_{201}$$

$$J(5, 5) = 0.0$$

$$J(5, 6) = 2.0 * t_{96}$$

$$J(6, 1) = 0.0$$

$$J(6, 2) = 4.0 * t_{122} * t_{207} - t_{193}$$

$$J(6, 3) = 2.0 * t_{151}$$

$$J(6, 4) = 4.0 * t_{151} * (t_{172} * t_7 + t_{166} * t_{18}) - 4.0 * t_{165} * t_{207}$$

$$J(6, 5) = 0.0$$

$$J(6, 6) = 2.0 * t_{115}$$

$$t_1 = \cos \beta_1$$

$$t_2 = t_1^2$$

$$t_3 = \cos \alpha_1$$

$$t_4 = t_3^2$$

$$t_6 = a^2$$

$$t_7 = 1/t_6$$

$$t_9 = \sin \alpha_1$$

$$t_{10} = t_9^2$$

$$t_{11} = b^2$$

$$t_{12} = 1/t_{11}$$

$$t_{14} = \sin \beta_1$$

$$t_{15} = t_{14}^2$$

$$t_{17} = c^2$$

$$t_{18} = 1/t_{17}$$

$$t_{20} = t_2 * t_4 * t_7 + t_{10} * t_{12} + t_{15} * t_4 * t_{18}$$

$$t_{21} = y_{2k} - y_{1k}$$

$$t_{31} = -t_2 * t_3 * t_7 * t_9 + t_9 * t_{12} * t_3 - t_{15} * t_3 * t_{18} * t_9$$

$$\begin{aligned}t_{32} &= x_{2k} - x_{1k} \\t_{34} &= t_1 * t_3 \\t_{35} &= x_{1k} - x_{10} \\t_{37} &= t_1 * t_9 \\t_{38} &= y_{1k} - y_{10} \\t_{40} &= z - z_{10} \\t_{43} &= (t_{34} * t_{35} - t_{37} * t_{38} - t_{14} * t_{40}) * t_7 \\t_{44} &= t_{43} * t_{37} \\t_{45} &= 2.0 * t_{44} \\t_{49} &= (t_9 * t_{35} + t_3 * t_{38}) * t_{12} \\t_{50} &= t_{49} * t_3 \\t_{51} &= 2.0 * t_{50} \\t_{52} &= t_{14} * t_3 \\t_{54} &= t_{14} * t_9 \\t_{58} &= (t_{52} * t_{35} - t_{54} * t_{38} + t_1 * t_{40}) * t_{18} \\t_{59} &= t_{58} * t_{54} \\t_{60} &= 2.0 * t_{59} \\t_{62} &= \cos \beta_2 \\t_{63} &= \cos \alpha_2 \\t_{64} &= t_{62} * t_{63} \\t_{65} &= x_{2k} - x_{20} \\t_{67} &= \sin \alpha_2 \\t_{68} &= t_{62} * t_{67} \\t_{69} &= y_{2k} - y_{20} \\t_{71} &= \sin \beta_2 \\t_{72} &= z_2 - z_{20} \\t_{77} &= (t_{64} * t_{65} - t_{68} * t_{69} - t_{71} * t_{72}) * t_7 \\t_{84} &= (t_{67} * t_{65} + t_{63} * t_{69}) * t_{12} \\t_{86} &= t_{71} * t_{63} \\t_{88} &= t_{71} * t_{67} \\t_{92} &= c^2 \\t_{93} &= 1/t_{92} \\t_{94} &= (t_{86} * t_{65} - t_{88} * t_{69} + t_{62} * t_{72}) * t_{18} \\t_{96} &= -t_{77} * t_{68} + t_{84} * t_{63} - t_{94} * t_{88} \\t_{101} &= t_{77} * t_{64} + t_{84} * t_{67} + t_{94} * t_{86} \\t_{104} &= z_2 - z_1\end{aligned}$$

$$t_{106} = t_7 * t_{14}$$

$$t_{108} = t_{18} * t_1$$

$$t_{110} = -t_{34} * t_{106} + t_{52} * t_{108}$$

$$t_{111} = 2.0 * t_{110} * t_{21}$$

$$t_{115} = -t_{77} * t_{71} + t_{94} * t_{62}$$

$$t_{117} = 4.0 * t_{110} * t_{96}$$

$$t_{119} = t_{43} * t_{34}$$

$$t_{120} = t_{49} * t_9$$

$$t_{121} = t_{58} * t_{52}$$

$$t_{122} = t_{119} + t_{120} + t_{121}$$

$$t_{132} = t_2 * t_{10} * t_7 + t_4 * t_{12} + t_{15} * t_{10} * t_{18}$$

$$t_{141} = t_{37} * t_{106} - t_{54} * t_{108}$$

$$t_{143} = t_{43} * t_{14}$$

$$t_{145} = t_{58} * t_1$$

$$t_{151} = -t_{44} + t_{50} - t_{59}$$

$$t_{159} = t_{15} * t_7 + t_2 * t_{18}$$

$$t_{165} = -t_{143} + t_{145}$$

$$t_{166} = t_{62} * t_{62}$$

$$t_{172} = t_{71} * t_{71}$$

$$t_{176} = -t_{166} * t_{63} * t_7 * t_{67} + t_{67} * t_{12} * t_{63} - t_{172} * t_{63} * t_{18} * t_{67}$$

$$t_{178} = t_{63} * t_{63}$$

$$t_{181} = t_{67} * t_{67}$$

$$t_{188} = t_7 * t_{71}$$

$$t_{190} = t_{18} * t_{62}$$

$$t_{193} = 4.0 * t_{151} * (-t_{64} * t_{188} + t_{86} * t_{190})$$

$$t_{201} = t_{166} * t_{181} * t_7 + t_{178} * t_{12} + t_{172} * t_{181} * t_{18}$$

$$t_{207} = t_{68} * t_{188} - t_{88} * t_{190}$$

Annexe E

Granulométrie des particules d'aluminium

Nous donnons ici les granulométries des particules d'aluminium Z600 et 10μ *sphérique* fournies par le producteur (TOYAL).



MASTERSIZER

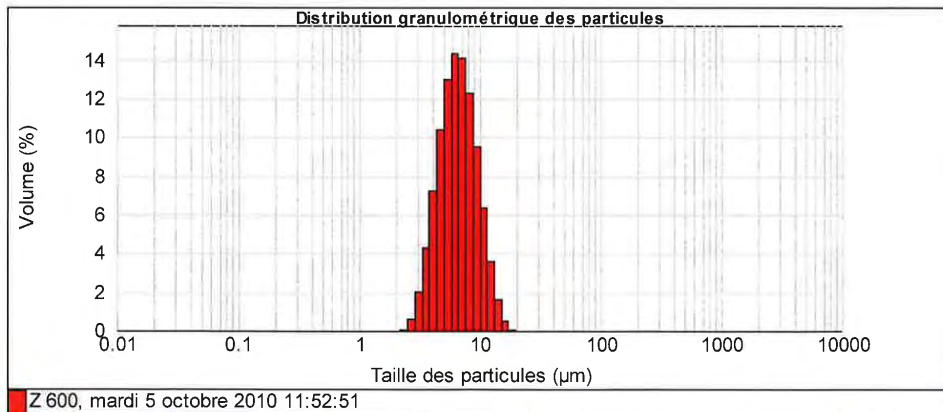


Rapport d'analyse

Nom de l'échantillon: Z.600 Ref SOP: Aluminium Liquide modifié Mesuré le: mardi 5 octobre 2010
 Origine: QUALITE Mesuré par: malvern2 Calculé le: mardi 5 octobre 2010
 Référence de lot: 201009M022 Source du résultat: Mesure

Particule: Aluminium Accessoire: Hydro 2000S (A) Obscurition: 13.85 %
 Indice de réfraction particule: 2.500 Absorption: 0.5 Modèle de calcul: Analyse standard
 Dispersant: Ethanol Gamme: 0.020 à 378.300 µm Résiduel pondéré: 0.429 %
 Indice de réfraction dispersant: 1.360 Result Emulation: Dé...

Concentration: 0.0119 %Vol Moyenne en volume D[4,3]: 6.924 µm Surface spécifique: 0.985 m²/g
 Span (10% - 90%): 0.979 Moyenne en surface D[3,2]: 6.090 µm Uniformité: 0.306
 Type de distribution: Volume
 d(0.1): 4.059 µm d(0.5): 6.484 µm d(0.9): 10.404 µm



Taille (µm)	Volume en %	Taille (µm)	Volume en %	Taille (µm)	Volume en %	Taille (µm)	Volume en %	Taille (µm)	Volume en %	Taille (µm)	Volume en %
0.010	0.00	0.105	0.00	1.096	0.00	11.482	3.63	120.226	0.00	1258.925	0.00
0.011	0.00	0.120	0.00	1.259	0.00	13.183	0.00	138.036	0.00	1445.440	0.00
0.013	0.00	0.136	0.00	1.445	0.00	15.136	0.00	158.489	0.00	1659.567	0.00
0.015	0.00	0.158	0.00	1.660	0.00	17.378	0.48	181.970	0.00	1905.461	0.00
0.017	0.00	0.182	0.00	1.905	0.00	19.953	0.03	208.930	0.00	2187.762	0.00
0.020	0.00	0.209	0.00	2.188	0.05	22.909	0.00	239.883	0.00	2511.886	0.00
0.023	0.00	0.240	0.00	2.512	0.60	26.303	0.00	275.423	0.00	2884.032	0.00
0.026	0.00	0.275	0.00	2.884	0.60	30.200	0.00	316.226	0.00	3311.311	0.00
0.030	0.00	0.316	0.00	3.311	2.03	34.674	0.00	363.078	0.00	3801.894	0.00
0.035	0.00	0.363	0.00	3.802	4.29	39.811	0.00	416.869	0.00	4365.158	0.00
0.040	0.00	0.417	0.00	4.365	7.26	45.709	0.00	478.630	0.00	5011.872	0.00
0.046	0.00	0.479	0.00	5.012	10.41	52.481	0.00	549.541	0.00	5754.399	0.00
0.052	0.00	0.550	0.00	5.754	12.99	60.256	0.00	630.957	0.00	6606.934	0.00
0.060	0.00	0.631	0.00	6.607	14.35	69.183	0.00	724.436	0.00	7585.776	0.00
0.069	0.00	0.724	0.00	7.586	14.10	79.433	0.00	831.764	0.00	8709.636	0.00
0.079	0.00	0.832	0.00	8.710	12.29	91.201	0.00	954.993	0.00	10000.000	0.00
0.091	0.00	0.955	0.00	10.000	9.51	104.713	0.00	1096.478	0.00		
0.105	0.00	1.096	0.00	11.482	6.37	120.226	0.00	1259.925	0.00		

Notes de l'opérateur:

FIGURE E.1 – Granulométrie des particules d'aluminium Z600

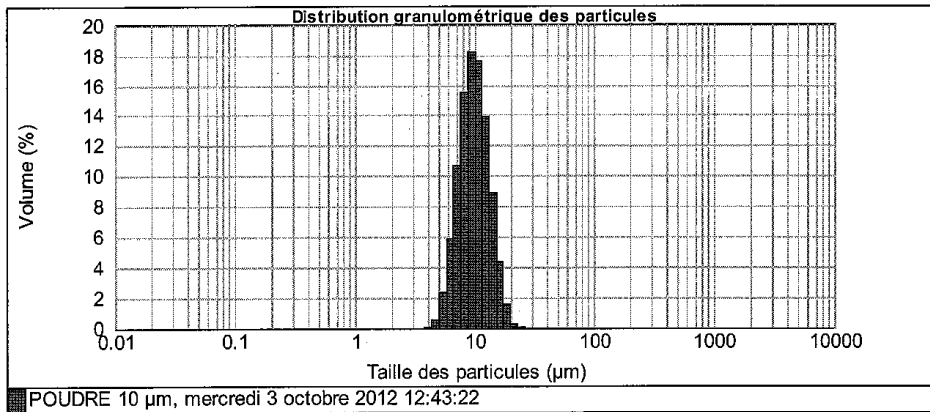


Rapport d'analyse

Nom de l'échantillon: POUDRE 10 µm **Ref SOP:** Aluminium Liquide modifié **Mesuré le:** mercredi 3 octobre 2012 12:43:22
Origine: QUALITE **Mesuré par:** malvern2 **Calculé le:** mercredi 3 octobre 2012 12:43:22
Référence de lot: SPHERIQUE **Source du résultat:** Édité

Particule: Aluminium **Accessoire:** Hydro 2000S (A) **Obscurcissement:** 14.01 %
Indice de réfraction particule: 2.500 **Absorption:** 0.5 **Modèle de calcul:** Analyse standard
Dispersant : Ethanol **Gamme:** 0.020 à 378.300 µm **Résiduel pondéré:** 0.533 %
Indice de réfraction dispersant: 1.360 **Result Emulation:** Dé...

Concentration: 0.0188 %Vol **Moyenne en volume D[4,3]:** 10.159 µm **Surface spécifique:** 0.641 m²/g
Span (10% - 90%): 0.759 **Moyenne en surface D[3,2]:** 9.362 µm **Uniformité:** 0.24
Type de distribution: Volume
 d(0.1): 6.730 µm d(0.5): 9.752 µm d(0.9): 14.133 µm



Taille(µm)	Volume en %	Taille(µm)	Volume en %	Taille(µm)	Volume en %	Taille(µm)	Volume en %	Taille(µm)	Volume en %	Taille(µm)	Volume en %
0.010	0.00	0.105	0.00	1.096	0.00	11.482	13.93	120.226	0.00	1258.925	0.00
0.011	0.00	0.120	0.00	1.259	0.00	13.183	8.87	138.038	0.00	1445.440	0.00
0.013	0.00	0.136	0.00	1.445	0.00	15.136	4.40	158.489	0.00	1659.587	0.00
0.015	0.00	0.156	0.00	1.660	0.00	17.378	1.55	181.970	0.00	1905.461	0.00
0.017	0.00	0.182	0.00	1.906	0.00	19.983	0.26	208.930	0.00	2187.762	0.00
0.020	0.00	0.209	0.00	2.188	0.00	22.909	0.02	239.883	0.00	2511.886	0.00
0.023	0.00	0.240	0.00	2.512	0.00	26.303	0.00	275.423	0.00	2884.032	0.00
0.026	0.00	0.275	0.00	2.884	0.00	30.200	0.00	316.228	0.00	3311.311	0.00
0.030	0.00	0.316	0.00	3.311	0.00	34.674	0.00	363.078	0.00	3801.894	0.00
0.035	0.00	0.363	0.00	3.802	0.00	39.811	0.00	416.889	0.00	4365.158	0.00
0.040	0.00	0.417	0.00	4.365	0.04	45.708	0.00	478.630	0.00	5011.872	0.00
0.046	0.00	0.479	0.00	5.012	0.59	52.481	0.00	549.541	0.00	5754.399	0.00
0.052	0.00	0.550	0.00	5.754	2.38	60.256	0.00	630.957	0.00	6606.934	0.00
0.060	0.00	0.631	0.00	6.607	5.88	69.183	0.00	724.436	0.00	7585.776	0.00
0.069	0.00	0.724	0.00	7.588	10.73	79.433	0.00	831.764	0.00	8709.636	0.00
0.079	0.00	0.832	0.00	8.710	15.54	91.201	0.00	954.993	0.00	10000.000	0.00
0.091	0.00	0.955	0.00	10.000	18.24	104.713	0.00	1096.478	0.00		
0.105	0.00	1.096	0.00	11.482	17.59	120.226	0.00				

Notes de l'opérateur:

FIGURE E.2 – Granulométrie des particules d'aluminium 10µ sphérique

Etude et simulation de la conductivité thermique de matériaux composites à matrice organique chargée et renforcée de fibres de carbone PITCH

Résumé

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du projet THEOREM porté par THALES Systèmes Aéroportés. Ce projet est un travail collaboratif entre partenaires industriels et académiques. Il a pour objectif de développer un matériau composite hybride constitué d'une matrice polymère chargée de micro et nanoparticules ayant une conductivité thermique importante et renforcée par des fibres longues de carbone PITCH. Le matériau final doit pouvoir atteindre des valeurs de conductivité thermique élevées équivalentes à celles de l'aluminium ($\sim 300\text{W/m/K}$).

Deux principaux axes ont été développés : un axe concernant la matrice chargée et un autre concernant les renforts fibreux.

L'axe matrice a permis de développer des modèles numériques de dispersion aléatoire de charges dans un V.E.R. prédéfini afin de déterminer les propriétés homogénéisées de la matrice chargée.

L'axe renfort a mis en avant l'influence de différentes architectures fibreuses sur les transferts de chaleur dans les trois directions de l'espace. La réunion de ces deux études a permis de déduire numériquement les propriétés effectives du composite final.

Les différents modèles numériques ont été corrélés avec différentes mesures expérimentales.

Mots-clés : Conductivité thermique, particules, fibres de carbone PITCH, propriétés effectives.

Abstract

This thesis was a part of our on-going research in the frame of the THEOREM project leaded by THALES Systèmes Aéroportés. This project was a collaborative work between industrial and academic partners. The purpose was to develop a hybrid composite material made of a polymeric matrix filled with micro and nanoparticles and reinforced with PITCH carbon fibres. The ultimate material should exhibit high thermal conductivity like aluminum ($\sim 300\text{ W/m/K}$). Two main lines are developed: one line on doped matrix and another one on reinforcements. On the matrix line numerical models of random dispersion of fillers in a predefined R.V.E. were developed to obtain homogenized properties of the doped matrix.

On the reinforcement line the influence of different fibre architectures on heat flux in the three directions of space was highlighted. Effective properties of the ultimate composite were numerically deduced from the gathering of those two lines.

Different numerical models were correlated with different experimental measurements.

Keywords: thermal conductivity, particles, PITCH carbon fibres, effective properties.