



**HAL**  
open science

# Matériaux composites à fibres courtes : relation entre facteur d'orientation et propriétés mécaniques et thermiques

Yves Bour

► **To cite this version:**

Yves Bour. Matériaux composites à fibres courtes : relation entre facteur d'orientation et propriétés mécaniques et thermiques. Sciences de l'ingénieur [physics]. Université Paul Verlaine - Metz, 1999. Français. NNT : 1999METZ006S . tel-01775783

**HAL Id: tel-01775783**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01775783v1>**

Submitted on 24 Apr 2018

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

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



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

6146977

# THESE

présentée à

**L'UNIVERSITE DE METZ**

pour obtenir le titre de

**DOCTEUR EN PHYSIQUE**  
Spécialité: Physique des matériaux

par

**Yves BOUR**

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE SCIENCES ET TECHNIQUES - METZ -	
N° Inv	19990205
Cote	S/M3 99/6
Loc	
Cat	OCLC

**Matériaux composites à fibres courtes.**

**Relation entre facteur d'orientation et propriétés mécaniques et  
thermiques.**

Soutenue publiquement le 09 Février 1999.

Composition du Jury:

Professeur A. Degiovanni  
Professeur J.M. Guet  
Professeur R. Gruber  
Professeur E. Patoor  
Professeur F.X. Royer  
Monsieur C. Paulick  
Monsieur J.J. Gau

Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Directeur de Thèse  
Co Directeur de Thèse  
Invité

Thèse prépa  
des Liquides

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



022 293121 0

amiques" du Laboratoire de Physique  
Technopôle Metz 2000.

16 JUIN 1999

---

<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
 <b>CHAPITRE 1: ELABORATION DES ECHANTILLONS</b>	
 <b>1-1 Les fibres utilisées.</b>	
1-1-1 Présentation.....	3
(i) Les fibres PAN.....	5
(ii) Les fibres de brai.....	5
(iii) Les fibres cellulosiques.....	6
1-1-2 L'ensimage des fibres.....	6
1-1-3 Propriétés des fibres utilisées dans l'étude.....	7
 <b>1-2 Les résines utilisées.</b>	
1-2-1 Généralités sur les résines époxydes.....	11
a- Les résines commerciales.....	14
b- Les résines expérimentales.....	15
 <b>1-3 Protocoles expérimentaux.</b>	
1-3-1 Les techniques expérimentales utilisées.....	18
a- Le dégazage.....	18
b- La coulée du mélange.....	20
1-3-2 Influence des méthodes d'élaboration sur l'orientation.....	22
a- L'homogénéisation sous vide.....	22
b- L'ensimage des fibres.....	23
c- La température d'élaboration.....	25
 <b>1-4 Conclusion.....</b>	
 <b>1-5 Bibliographie.....</b>	
 <b>26</b>	



## CHAPITRE 2: LE FACTEUR D'ORIENTATION

### 2-A Modélisation et détermination expérimentale de l'orientation des fibres.

2-A-1	Modèle initial.....	27
2-A-1-1	Principe des modèles basés sur l'équation de Jeffery.....	27
2-A-1-2	Influence de la concentration en fibres.....	31
2-A-1-3	Application dans le cas d'un mouvement planaire...32	
2-A-1-4	Application du modèle de Jeffery et des modèles dérivés.....	33
2-A-2	Modèle statistique de la fonction de distribution.....	33
2-A-2-1	La fonction de distribution planaire.....	35
2-A-2-2	La fonction de distribution tridimensionnelle.....	36
2-A-3	Les tenseurs d'orientation.....	37
2-A-3-1	Cas général.....	37
2-A-3-2	Le tenseur d'ordre deux.....	39
2-A-4	Les relations de fermeture pour un tenseur d'ordre 4.....	41
2-A-5	Forme numérique de la fonction de distribution et des tenseurs d'orientation.....	43
2-A-6	Les approximations grossières de la fonction de distribution.....	44
2-A-7	Les approches phénoménologiques.....	47
2-A-8	Les facteurs caractérisant l'orientation.....	48
2-A-8-1	Les paramètres issus de la FDO.....	49
2-A-8-2	Remarques sur les facteurs d'orientation de Hermans et exemples d'application.....	51

### 2-B Détermination des paramètres d'orientation de fibre courtes dans une matrice.

2-B-1	Les méthodes manuelles.....	54
2-B-2	Les méthodes physiques.....	54
2-B-3	L'analyse d'image.....	57
2-B-3-1	L'analyse en deux dimensions.....	58
2-B-3-2	L'analyse en trois dimensions.....	61

**2-C La méthode d'analyse retenue.**

2-C-1 Le matériel utilisé.....	70
2-C-1-1 Les échantillons.....	70
2-C-1-2 L'appareillage.....	71
2-C-2 Le traitement de l'image par simplification de son contenu.....	72
2-C-2-1 Les filtres en niveaux de gris.....	73
2-C-2-2 Seuillage d'une image en niveaux de gris.....	77
2-C-2-3 Application de filtres à l'image binarisée.....	78
2-C-3 Traitement de l'image par détection des discontinuités locales.....	82
2-C-4 Bilan des méthodes testées.....	82

**2-D Détermination des caractéristiques spatiales des fibres.**

2-D-1 Le décroisement des fibres.....	84
2-D-2 Détermination de l'orientation planaire.....	85
2-D-2-1 Analyse de l'orientation sur une image binaire.....	86
2-D-2-2 Analyse de l'orientation sur une image en niveaux de gris... ..	88
2-D-2-3 Comparaison des deux types d'analyse.....	89
2-D-3 Calcul du rapport de forme des fibres.....	90

2-E Conclusion.....	91
---------------------	----

2-F Bibliographie.....	92
------------------------	----

**CHAPITRE 3: L'ORIENTATION DANS UN COMPOSITE A FIBRES COURTES.****3-1 Les méthodes d'orientation des fibres courtes dans une matrice homogène.**

3-1-1 Les méthodes classiques.....	95
a- Les procédés.....	95
b- Les théories.....	98
3-1-2 Les méthodes d'orientation des fibres sous champs magnétiques.....	98

---

a- Différents travaux effectués dans le domaine.....	98
b- Différentes théories pour expliquer l'action des champs.....	100
<b>3-2 Paramètres d'élaboration d'un matériau composite par moulage.</b>	
3-2-1 Préparation des éprouvettes et influence de la géométrie du moule .....	102
3-2-2 Influence de la viscosité du mélange.....	105
a- Techniques expérimentales.....	105
b- Influence de la vitesse de cisaillement.....	105
c- Influence de la concentration en fibres.....	106
d- Influence de la température.....	107
e- Influence des caractéristiques des fibres.....	108
<b>3-3 Elaboration d'un matériau composite sous champs.</b>	
3-3-1 Présentation de la méthode développée.....	109
3-3-2 Dispositif expérimental.....	112
3-3-3 Paramètres influençant l'orientation des fibres.....	115
a- Intensité du champ HF.....	115
b- Intensité du champ statique.....	116
c- Influence de la température.....	117
d- Influence de la longueur des fibres.....	119
e- Influence du temps d'orientation.....	120
3-3-4 Facteur d'orientation obtenu en fonction du type de résine.....	122
<b>3-4 Conclusion.....</b>	123
<b>3-5 Bibliographie.....</b>	124

## **CHAPITRE 4: FACTEUR D'ORIENTATION ET PROPRIETES MECANIQUES.**

### **4-1 Bibliographie.**

---

4-1-1 Le module d'élasticité dans un composite à fibres courtes.....	128
4-1-2 Modèles théoriques du module d'élasticité.....	129
a- Historique et modèles limites.....	129
b- Modèles phénoménologiques.....	131
c- Modèles d'homogénéisation.....	134
d- Quelques modèles particuliers.....	140
<b>4-2 Les techniques expérimentales.</b>	
4-2-1 L'appareillage utilisé.....	141
4-2-2 Les normes choisies.....	142
4-2-3 Les mesures de densité.....	143
<b>4-3 Résultats expérimentaux.</b>	
4-3-1 Les mesures de porosité.....	144
a- Influence du mode de préparation.....	144
b- Influence du champ HF.....	144
c- Influence du champ statique.....	146
d- Influence du type de fibres.....	147
e- Influence de la résine.....	147
4-3-2 Les caractéristiques mécaniques.....	148
a- Résine HY5052/CY5052.....	149
b- Résine HY5051/CY219.....	151
c- Résine ARC 12/15.....	154
d- Résine ARC 40/32.....	155
4-3-3 Interprétation des résultats expérimentaux.....	157
4-3-4 Comparaison entre quelques méthodes de simulation mécanique	
a- Les modèles phénoménologiques.....	159
b- Quelques modèles d'homogénéisation.....	161
<b>4-4 Conclusion.....</b>	<b>162</b>
<b>4-5 Bibliographie.....</b>	<b>163</b>

**CHAPITRE 5: PHENOMENES THERMIQUES.**

<b>5-1 Réflexions sur la démarche expérimentale.....</b>	<b>166</b>
<b>5-2 Description du dispositif.....</b>	<b>168</b>
<b>5-3 Modèles de simulation</b>	
5-3-1 Les modèles limites série et parallèle.....	176
5-3-2 Modèles phénoménologiques intermédiaires.....	177
5-3-3 Les méthodes d'homogénéisation	
a- Principe de la méthode.....	183
b- Le traitement de l'inclusion.....	184
c- La méthode de l'inclusion équivalente.....	185
d- Limites de la méthode.....	187
e- Les méthodes autocohérentes.....	187
f- Exemples de modèles.....	188
<b>5-4 Résultats expérimentaux.</b>	
5-4-1 Analyse thermique d'un composite fibres courtes de carbone - résine époxyde.....	192
a- Influence de la porosité.....	193
b- Variations avec le taux de fibres.....	194
c- Variations avec la longueur des fibres.....	196
d- Variations avec l'orientation des fibres.....	200
e- Variations en fonction du précurseur des fibres.....	202
5-4-2 Cohérence des résultats expérimentaux avec les simulations.....	206
a- Les modèles phénoménologiques.....	207
b- Les modèles d'homogénéisation.....	210
c- Corrélation des orientations déduites de la conductivité thermique avec l'analyse d'images.....	214
d- Comparaison des conductivités mesurées avec des valeurs tirées de la littérature.....	215

---

<b>5-5 Conclusion.....</b>	<b>217</b>
<b>5-6 Bibliographie.....</b>	<b>217</b>
<b>CONCLUSION GENERALE.....</b>	<b>219</b>
<b><u>ANNEXES:</u></b>	
<b>Annexe 1: Les différents régimes de concentration en fonction du facteur de forme des fibres utilisées comme renforts.....</b>	<b>I</b>
<b>Annexe 2: Effet de l'ensimage sur la viscosité pour différentes concentrations en fibres.....</b>	<b>II</b>
<b>Annexe 3: Analyse d'image par traitement des discontinuités locales</b>	
A-3-1 La technique du gradient.....	IV
A-3-2 La technique de Laplace.....	V
A-3-3 La technique du patron (Template matching).....	VII
A-3-4 Détection robuste des contours.....	VIII
A-3-5 Enchaînements et approximation polygonale.....	X
<b>Annexe 4: Fluctuations de température lors de la mesure de la conductivité thermique d'un composite.....</b>	<b>XII</b>

# **INTRODUCTION**

La science des matériaux connaît une évolution régulière depuis des siècles en symbiose avec les progrès de la civilisation. Après une période de mûrissement, les nouveaux matériaux entrent régulièrement dans une phase « industrielle » correspondant à des applications destinées au « grand public ». C'est ainsi que l'industrie sidérurgique est apparue au 19<sup>ème</sup> siècle après plusieurs siècles de progrès dans la maîtrise des procédés de fabrication avec en toile de fond une demande croissante en matériaux ferreux.

La fin du 20<sup>ème</sup> siècle connaît des progrès techniques importants dopés par une demande de la société en nouvelles technologies. Des matériaux qui n'étaient jusqu'alors destinés qu'à des domaines très techniques (formule 1, courses transatlantiques,...) trouvent maintenant une application dans la vie courante (GPS, fibres optiques, lasers, ABS, freinage,...).

La science des matériaux connaît une évolution similaire avec l'émergence dans la vie de tous les jours des matériaux de haute technologie que sont les composites avancés. Sous ce terme sont désignés plusieurs catégories de matériaux ayant toutes en commun l'association d'éléments dont les propriétés sont complémentaires. Usuellement, les matériaux composites sont divisés en trois catégories: les composites céramiques, les composites polymériques et les composites à matrice métallique.

Historiquement, les premiers matériaux composites sont d'origine naturelle. Certaines plantes développent une structure fibreuse de façon à renforcer leur résistance aux intempéries. Quant au corps humain, n'est il pas le matériau composite le plus complexe qui soit?

Dés son apparition, l'homme a tenté de transformer les matériaux afin de les modeler en fonction de ses besoins. Il s'est ainsi rendu compte que la voie la plus prometteuse consiste à associer des matériaux, de sorte que les propriétés du composite résultant soient supérieures à celles des constituants pris individuellement. Se pose alors le problème de l'homogénéité et ce n'est qu'avec les progrès de la connaissance atomique et moléculaire de la matière au 18<sup>ème</sup>



siècle que des réponses ont pu être apportées grâce à la compréhension des phénomènes aux interfaces des constituants.

L'engouement pour les matériaux composites a débuté avec la naissance de l'aéronautique. Les pionniers se sont rendus compte de la spécialisation des oiseaux et ils ont essayé de reproduire la structure de leurs os et plumes. La passion de ces hommes pour l'aéronautique puis l'espace ainsi que les perspectives économiques et humaines issues de ces nouvelles technologies ont provoqué d'importants investissements en recherche et développement.

C'est ainsi que les matériaux composites utilisant des renforts fibreux (verre, carbone, Kevlar...), insérés dans une matrice polymérique, ont suscité un fort enthousiasme dans les domaines sportifs, automobiles,...

Dans ce travail, des composites à base de résine époxyde, renforcée de fibres courtes de carbone, sont élaborés par une méthode originale permettant une orientation des fibres dans une direction privilégiée. La mise au point de cette technique nécessite une recherche approfondie des caractéristiques des matériaux ainsi que la mise au point de nouvelles résines époxydes. L'étalonnage de l'équipement et l'analyse des paramètres d'orientation sont des parties importantes de notre étude.

L'évaluation de la qualité de l'orientation nécessite le choix d'une technique et la mise au point d'un protocole adapté au matériau considéré. La technique de mesure de la conductivité thermique en continu est développée et adaptée à l'étude des polymères (dont la conductivité est très faible).

L'orientation des fibres, observée par analyse optique de la surface des échantillons, est reliée à la conductivité dont on montre qu'elle est caractéristique de l'orientation volumique du matériau.

Les matériaux que nous avons élaborés présentent une amélioration significative des propriétés mécaniques et thermiques par rapport aux matériaux existants.

L'évolution des paramètres expérimentaux en fonction de la direction d'orientation des fibres est mise en relation avec des modèles de comportement théoriques.

## **CHAPITRE I:**

# **ELABORATION DES ECHANTILLONS**

Les travaux effectués portent sur l'étude de composites à base de fibres de carbone courtes insérées dans différentes résines époxydes. Des fibres de carbone et des résines ayant des propriétés physiques et mécaniques différentes ont été associées dans le but d'obtenir le matériau composite le plus performant possible tant au niveau mécanique que thermique.

## **1-1 Les fibres utilisées**

### **1-1-1 Présentation**

Les fibres continues ou discontinues, tissées ou non tissées, ont pour rôle essentiel d'améliorer les propriétés mécaniques d'un composite, notamment sa rigidité et sa dureté. La matière, sous forme de fibres, a en effet une résistance à la rupture et un module d'élasticité supérieurs à la forme massique (exemple des câbles de grue).

Une opération d'étirage de la fibre est nécessaire pour permettre l'élimination de ses défauts et ainsi améliorer les propriétés du matériau. En ce qui concerne les fibres organiques, cet étirage va orienter les macromolécules des polymères amorphes et les cristallites des polymères semi-cristallins. Cette orientation se fait parallèlement à la direction de sollicitation.

On obtient ainsi une structure anisotrope (du type graphitique) avec augmentation du module élastique et diminution de la déformation à la rupture [1]. Les propriétés mécaniques sont contrôlées longitudinalement par des liaisons covalentes et transversalement par des liaisons secondaires (Van der Waals) [2].

En plus de bonnes propriétés mécaniques, une plus grande légèreté, une meilleure résistance thermique ainsi qu'un plus faible prix de fabrication des fibres sont recherchés. La compatibilité fibres - résines, l'adaptabilité aux procédés de mise en œuvre sont des paramètres importants dans la fabrication d'un matériau. Théoriquement, le filage du carbone en solution est possible mais à des conditions de température et de pression prohibitives. De plus, le graphite est insoluble dans la plupart des solvants. Le filage à partir d'un collodion (solution de nitrocellulose dans un mélange d'alcool et d'éther) est donc impossible. Les

fibres de carbone sont produites par transformation d'un précurseur organique. Cela se fait par pyrolyse, en atmosphère contrôlée, de fibres organiques réticulées et orientées [3].

Dans le graphite, les atomes sont disposés en réseaux hexagonaux situés dans des plans parallèles décalés. Un atome de carbone se projette au centre d'un hexagone du plan adjacent. Dans un même plan, les atomes sont liés de façon covalente (distance inter - atomique de 0.142 nm). La liaison entre les plans est faible et la distance inter - atomique plus élevée (0.335 nm). Cette structure génère une forte anisotropie. Alors que les propriétés mécaniques transverses sont faibles, longitudinalement elles sont élevées. Il en est de même des conductibilités thermiques et électriques (Figure 1-1).

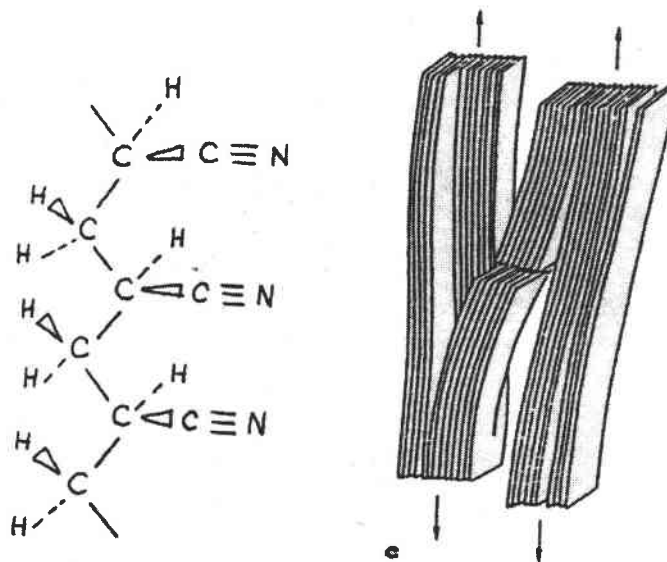


Figure 1-1: Structure tridimensionnelle d'un précurseur des fibres (Polyacrylonitrile) et comportement en traction du graphite .

Dans les fibres de carbone, à la différence du graphite, les différents plans graphitiques sont désorientés les uns par rapport aux autres. Il n'y a pas d'ordre dans les trois dimensions du fait des rotations des plans individuels autour de l'axe c, on parle de structure turbostratique bidimensionnelle. Les propriétés physiques des fibres dépendent du choix du matériau précurseur, des traitements thermiques et de l'étirage.

Les trois types de précurseurs communément utilisés sont:

- les fibres polyacrylonitriles (PAN);
- les fibres de houille ou de pétrole (PITCH);

- les fibres cellulosiques (rayonne).

### (i) Les fibres PAN

La fibre PAN, de motif de base  $-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CN}))_n-$ , conduit à un squelette de fibre entièrement carboné en effectuant les étapes suivantes:

- transformation PAN fusible en PAN infusible par chauffage de la fibre PAN entre 200°C et 300°C en atmosphère d'oxygène ou de gaz inerte (réaction de réticulation et de cyclisation avec création de doubles liaisons).

- transformation PAN infusible en fibres de carbone Haute Température (HT) (carbonisation). Cette opération se fait par élévation de la température (de 1100°C à 1500°C). Les atomes autres que le carbone sont éliminés sous forme de gaz d'où une perte de poids de l'ordre de 50% (plus la température est élevée, meilleure est l'orientation des plans selon l'axe de la fibre et donc plus forte la résistance à la rupture).

- transformation fibres de carbone HT en fibres de carbone à Haut Module (HM) (graphite). Le traitement thermique doit alors être supérieur à 2000°C. La fibre perd alors ses derniers atomes d'azote et on obtient une structure proche de celle du graphite et ce, sans étirage. On peut ainsi doubler le module d'élasticité ( $E=500\,000$  MPa pour les fibres HM). L'utilisation d'un précurseur spécifique et une graphitisation vers 3300°C permet d'obtenir des fibres à très haut module (THM) avec  $E > 500\,000$  MPa.

A la surface de ces fibres peut exister une quantité importante d'oxygène, d'azote ou d'hydrogène liée à l'oxydation de la surface des fibres. La réactivité superficielle des fibres est alors insuffisante pour assurer une bonne cohésion avec la résine.

Pour éviter ce problème, on effectue une oxydation de la fibre ce qui augmente le nombre de sites oxydés en surface et donc la composante polaire de l'énergie de surface (ou alors, cela élimine les couches de faible cohésion en surface). Après cette oxydation les fibres sont ensimées.

(ii) Les fibres de BRAI (PITCH)

Il s'agit de résidus de la distillation du pétrole et de la houille qui, après filage à l'état fondu, donnent des fibres. Un traitement thermique entre 300°C et 500°C conduit à une déshydrogénation. Une carbonisation et une graphitisation sont effectuées à plus de 2000°C. Les fibres de carbone ainsi obtenues auront une qualité qui va dépendre du brai initial utilisé. Ces fibres se caractérisent par une augmentation de la densité et du module mais aussi par la diminution de l'allongement à la rupture.

(iii) Les fibres cellulosiques

Les fibres cellulosiques de type  $(C_6H_{10}O_5)_n$  conduisent à des fibres de carbone après les étapes suivantes:

- désorption de l'eau;
- élimination des groupes hydroxyles;
- traitement thermique (carbonisation) par élimination des liaisons dues à l'oxygène;
- graphitisation de la structure.

1-1-2 L'ensimage des fibres

Cette opération permet le contrôle de la cohésion fibre - matrice ainsi que la protection de la fibre. Les fibres de carbone sont ensimées avec des polymères époxydes du type DGEBA (sigle qui sera explicité par la suite) pour une utilisation comme renforts des résines poly-époxydes (Paragraphe 1-2).

Les fibres de carbone étant hydrophobes, l'ensimage ne modifie donc pas la quantité d'eau adsorbée (qui dépendra du nombre de sites d'accueil créés en surface par le traitement oxydant) mais fait office de gaine perméable à l'eau [4].

L'ensimage modifie les propriétés acido - basiques de la surface du carbone en lui donnant un caractère **amphotère**. Il en résulte une meilleure tenue au cisaillement de l'interface ainsi qu'aux ruptures cohésives dans les couches à l'interface.

### 1-1-3 Propriétés des fibres utilisées dans l'étude

Les fibres utilisées sont de type PAN et PITCH et sont respectivement référencées T300 et P55. Elles sont fabriquées par TORAYCA [5] et AMOCO [6] puis conditionnées par APPLY CARBON [7].

#### a- Propriétés physiques et physico-chimiques

Type de fibres	T300	P55
Contrainte à la rupture (GPa)	3.65	1.90
Module d'Young (GPa)	231	380
Densité (g/cm <sup>3</sup> )	1.76	2
Elongation à la rupture (%)	1.4	0.5
Diamètre du filament (μm)	7	10
Dosage en carbone (%)	92	99+
Aire de la surface d'une fibre (m <sup>2</sup> /g)	0.45	0.35
Résistivité électrique (3) (μΩ.m)	18	8.5
Conductivité thermique (3) (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	8.5	120
CTE à 21°C (3) (ppm/°C)	-0.6	-1.3

(3) dans la direction longitudinale.

Tableau 1-1: Propriétés des fibres de carbone T300 et P55

#### b- Distribution des longueurs des fibres courtes utilisées

Les différentes distributions sont obtenues par observation au microscope puis par analyse d'images. Les fibres de 2 mm de longueur n'ont pu être étudiées car leur longueur est trop importante par rapport au grossissement minimal du microscope.

(1) Les fibres PAN

Remarque: Les fibres mld sont élaborées par broyage tandis que les fibres T300 calibrées sont coupées.

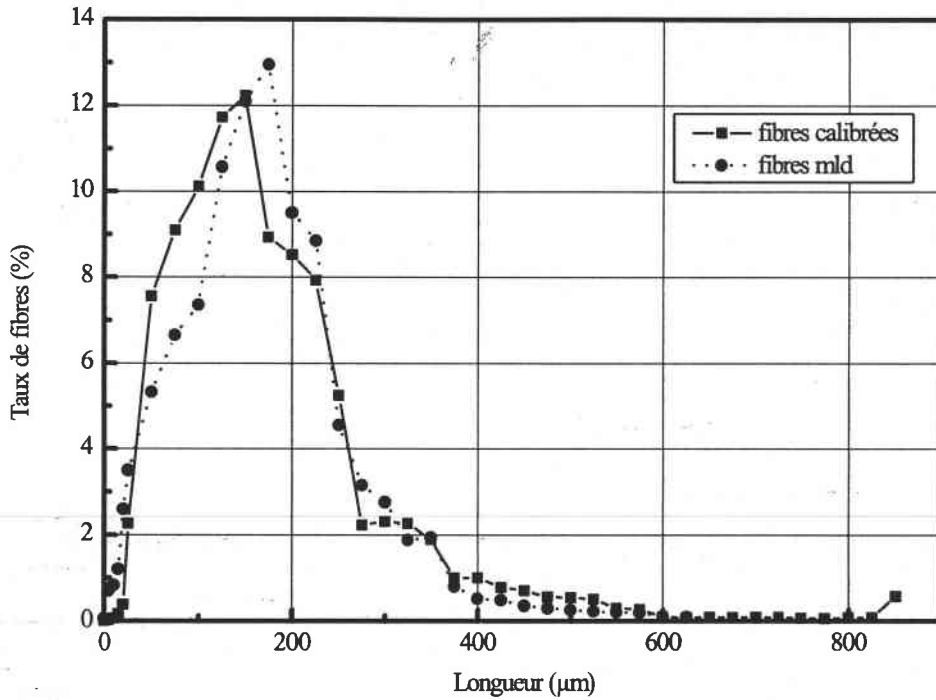


Figure 1-2: Distribution des fibres T300-200µm mld et T300 - 200µm calibrées.

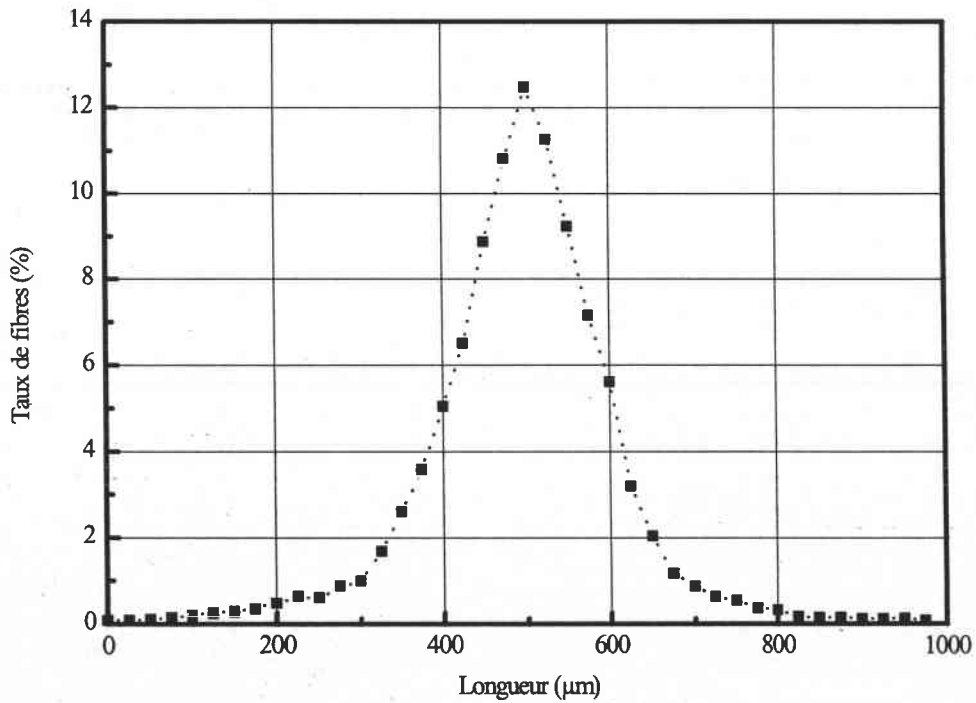
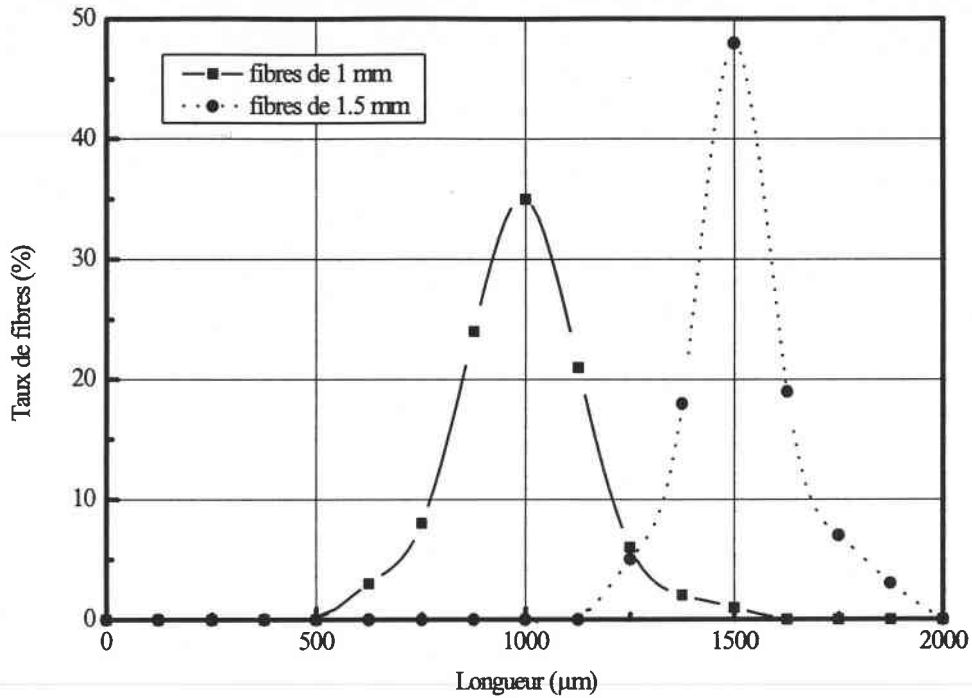


Figure 1-3: Distribution des fibres T300 mld-500µm





(b)

Figure 1-4: Distribution des fibres T300 mld-1 mm et 1.5 mm.

(2) Les fibres PITCH.

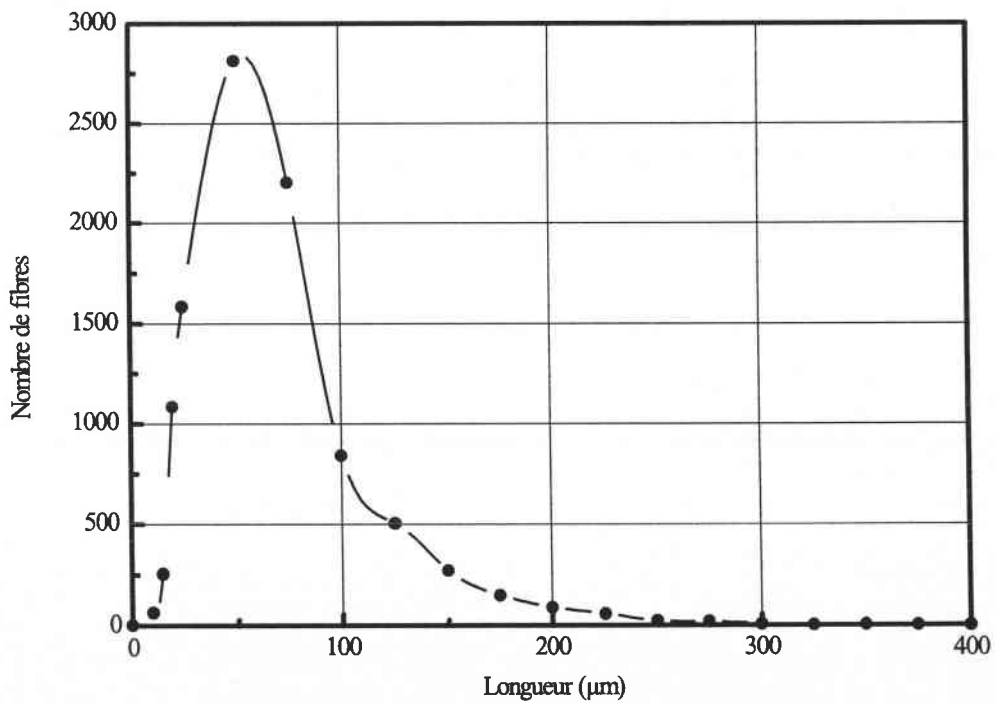


Figure 1-5: Distribution en nombre des fibres P55

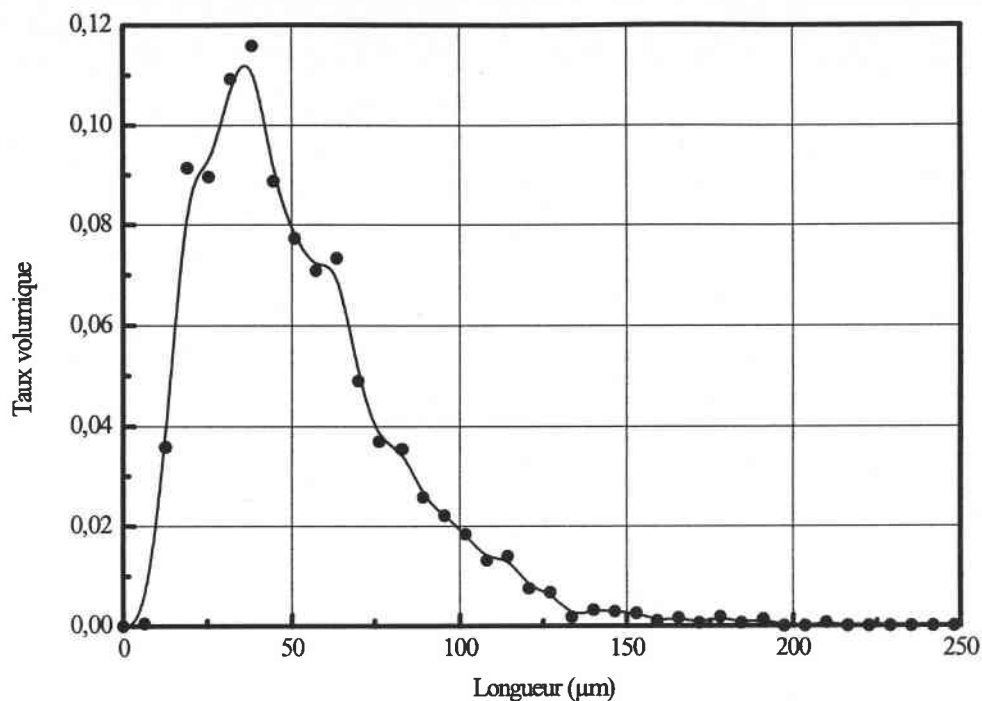


Figure 1-6: Distribution en volume des fibres P55.

De l'analyse des distributions précédentes on peut conclure que plus la longueur des fibres augmente, plus la statistique des longueurs de fibres est pointue.

Visuellement, on observe que les fibres T300 mld/ 200µm (Figure 1-7) sont très enchevêtrées à la différence des fibres T300 calibrées/ 200µm (Figure 1-8).

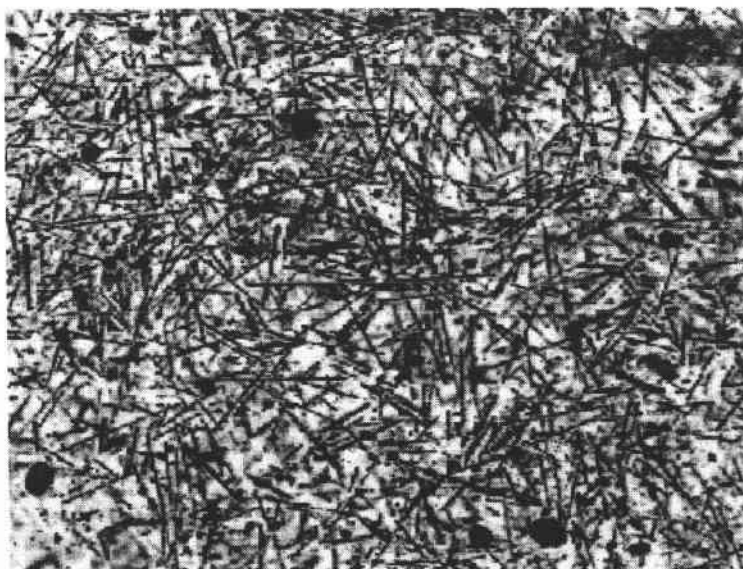


Figure 1-7: Fibres T300 mld broyées.

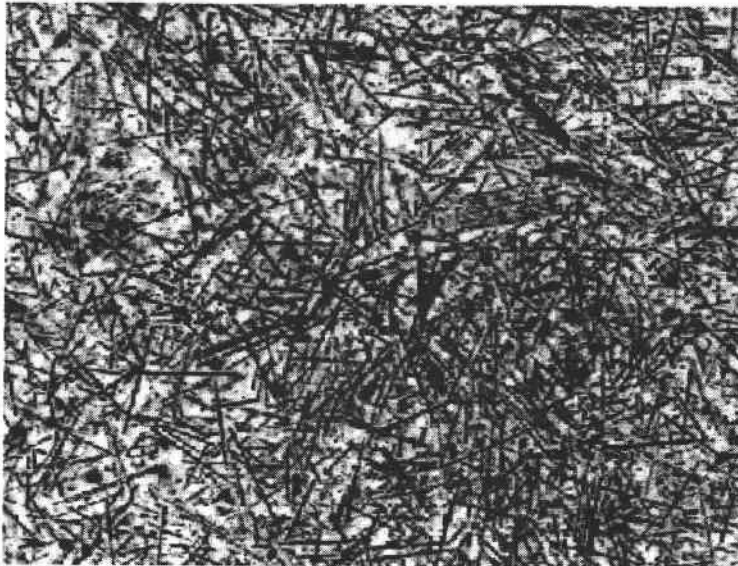


Figure 1-8: Fibres T300 calibrées coupées.

Cette observation est liée aux procédés de fabrication. Les fibres T300 mld sont broyées [7], leur longueur dépend du temps de broyage (et elles sont plus emmêlées). Les fibres T300 calibrées et P55 sont coupées à la longueur voulue.

## 1-2 Les résines utilisées

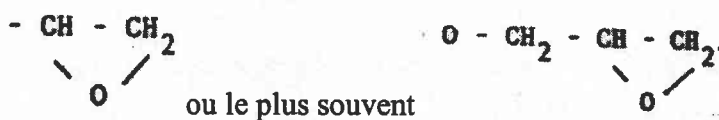
### 1-2-1 Généralités sur les résines époxydes

Dans ce travail, deux catégories de résines ont été utilisées:

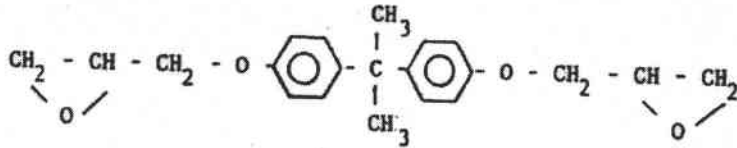
- des résines commerciales (AY105, AY5051 et AY5052 de CIBA GEIGY [8]);
- des résines expérimentales (12/15 et R40D32 de la société ARC [9]).

Toutes ces résines époxydes sont bicomposants. Elles sont obtenues par polymérisation [10] d'un mélange résine époxyde + durcisseur.

Les polyépoxydes sont des thermodurcissables contenant dans leur molécule une ou plusieurs fonctions époxydes:

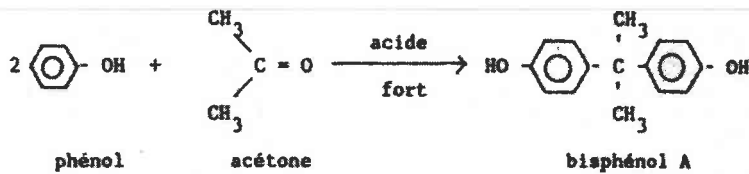


Le diglycidyl éther du diphenyl-ol-propane (ou bisphénol A) DGEBA est un prépolymère de résine époxyde très connu :

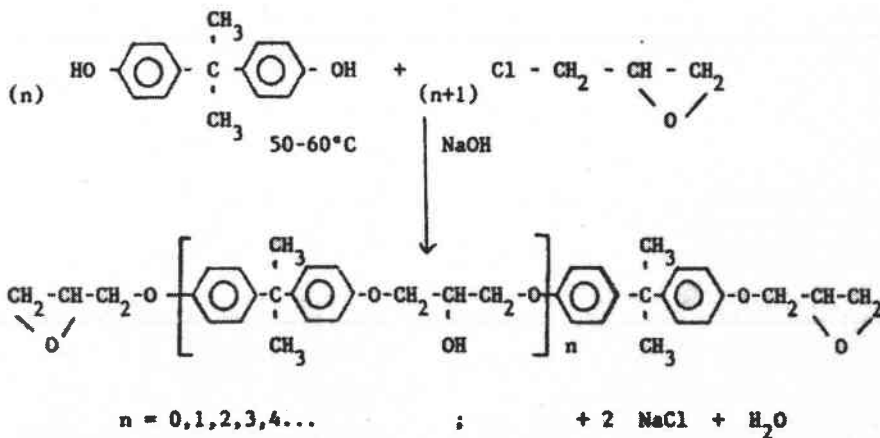


La synthèse du DGEBA à partir du bisphénol A s'effectue en deux étapes [11]:

- fabrication du bisphénol A:



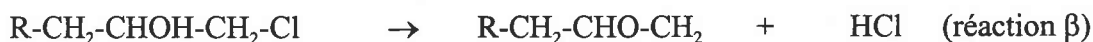
- formation du DGEBA:



D'une manière générale, la fabrication des prépolymères époxydes se fait en deux étapes:

(a) addition de l'épichlorure du glycol sur un composé disposant d'un hydrogène mobile (réaction  $\alpha$ )

(b) déshydrogénation pour former la fonction époxyde (réaction  $\beta$ ).

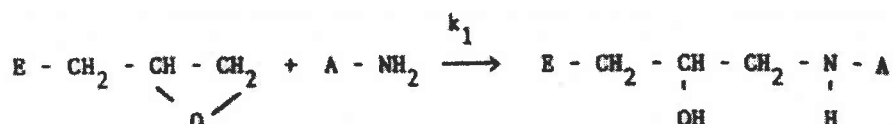


Ces prépolymères de type époxyde forment le matériau polymère final en créant des réseaux tridimensionnels par **homopolymérisation** (c'est à dire à l'aide d'amorceurs acides ou basiques) ou dans le cas étudié ici, par **copolymérisation** avec des composés disposant de fonctions capables de s'ajouter au cycle époxy (phénols, amines...). On parle alors de durcisseurs.

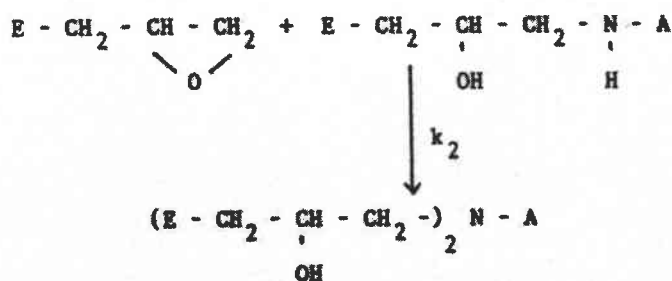
Pour ce travail, les durcisseurs utilisés sont essentiellement des alcools et des amines.

On distingue trois types de réaction entre les époxydes et les amines:

(1) réaction époxyde - amine primaire:

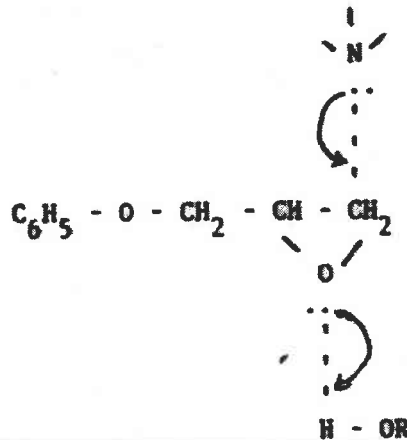


(2) réaction époxyde - amine secondaire:



## (3) polymérisation amorcée par un alcool.

Il est important de préciser que la présence d'hydroxyles (eau, alcool, phénols, acides...) conduit à la formation d'un complexe de trois molécules qui facilite l'attaque nucléophile de l'amine:



La cinétique de la réaction entre l'époxyde et l'amine sera donc autocatalytique du fait de l'accumulation de groupes hydroxyles durant la réaction.

1-2-2 Les résines et durcisseurs utilisésa- Les résines commerciales

## \* Composition chimique:

Seules les caractéristiques générales des produits sont précisées par le fabricant.

**Résines:** époxydes modifiées à base de bisphénol A.

**Durcisseurs:** Polyaminoamides modifiés avec une amine tertiaire.

## \* Propriétés:

Les propriétés des résines commerciales sont regroupées dans le tableau 1-2.

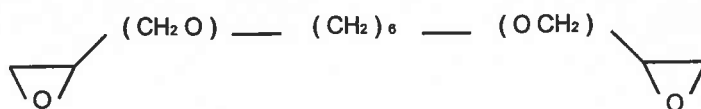
Résines	AY105 / HY 991	CY219 / HY5161	LY5052 / HY5052
Viscosité du durcisseur (20°C, mPa.s)	25000-30000	30-70	30-70
Viscosité de la résine (20°C, mPa.s)	9000-13000	10000-12000	900-1600
Viscosité du mélange (20°C, mPa.s)	15000	1100	680
Rapport de mélange (Résine/Durcisseur) (100/R)	50	50	38
Densité de la matrice (g/cm <sup>3</sup> )	1,15	1,16	1,16
Temps d'utilisation du mélange (mn) à 20°C	50	45	240
Module d'Young (MPa)	2000	2700	2700
Contrainte à la rupture en traction (MPa)			77
Déformation à la rupture (%)		2,5	2,5
Module en flexion (MPa)		3050	
Contrainte à la rupture en flexion (MPa)		98	
Flèche à la rupture (mm)		45	
Module en compression (Mpa)			
Contrainte à la rupture en compression (Mpa)			
Déformation à la rupture (%)			
Température de transition vitreuse (°C)			85
Conductivité thermique (W/m.K)	0,2	0,2	0,2

Tableau 1-2: Caractéristiques des résines commerciales.

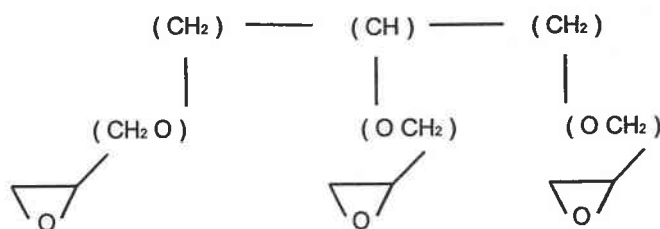
b- Les résines expérimentales.

\* Composition chimique:

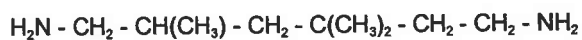
**ARC 12/15:** Prépolymère 12: Résine à base de bisphénol A.**Durcisseur 15:** Benzalcool 2.4.6- Tri(Diméthyl-amino-éthyl)  
phénol polyéthyl-amine.**ARC 40/32:** Prépolymère 40: 29.5% de résine rigidifiante à  
base de bisphénol A



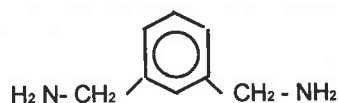
70.5% de résine à base de bisphénol A à laquelle on ajoute du 1-6 hexane-diol-glycid-éther triméthyl-ol-propane-triglycid-éther



**Durcisseur 32: Triméthyl-hexane-éthylène-diamine**



et/ou



\* Propriétés des résines ARC:

Elles sont résumées dans le tableau 1-3.



Résines	ARC 12/15	ARC 40/32
Viscosité du durcisseur (20°C, mPa.s)	600	200
Viscosité de la résine (20°C, mPa.s)	1800	1300
Viscosité du mélange (20°C, mPa.s)	1200	400
Rapport de mélange (Résine/Durcisseur) (100/R)	33	31,95
Densité de la matrice (g/cm <sup>3</sup> )	1,13	1,1
Temps d'utilisation du mélange (mn) à 20°C		
Module d'Young (MPa)	1600	3900
Contrainte à la rupture en traction (MPa)	45	75
Déformation à la rupture (%)	5	3
Module en flexion (MPa)	1500	3600
Contrainte à la rupture en flexion (MPa)	65	110
Flèche à la rupture (mm)	13	14,5
Module en compression (Mpa)	1250	3000
Contrainte à la rupture en compression (Mpa)	70	110
Déformation à la rupture (%)	5,5	5
Température de transition vitreuse (°C)	75	85
Conductivité thermique (W/m.K)	0,2	0,2

Tableau 1-3: Caractéristiques des résines expérimentales.

Si l'on compare les caractéristiques mécaniques des résines expérimentales et des résines commerciales, on note que les premières sont nettement plus performantes.

Les caractéristiques mécaniques des résines expérimentales sont représentée sur la figure 1-9 sous forme de courbe contrainte - déformation.

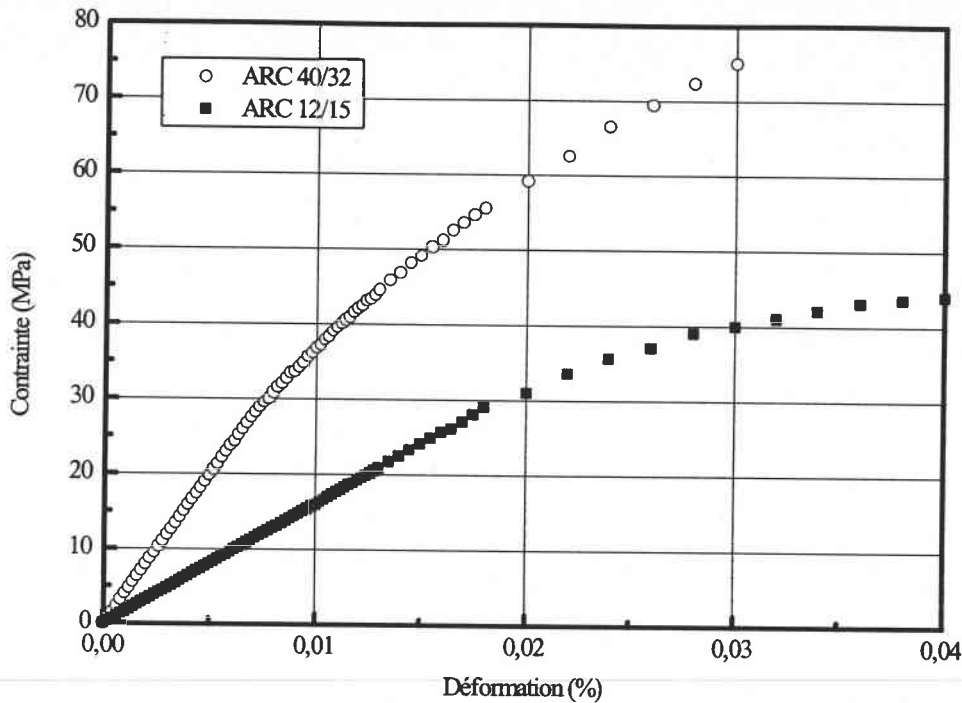


Figure 1-9: Caractéristiques mécaniques des résines expérimentales.

### 1-3 Protocoles expérimentaux

Au cours de cette étude, il est apparu que l'élaboration d'un matériau composite de bonne qualité dépend fortement des conditions expérimentales. Pour obtenir le meilleur comportement mécanique possible, il est essentiel d'évacuer l'ensemble des impuretés pouvant faire office défaut et ce, de façon reproductible. Il est nécessaire de faire disparaître les bulles d'air apparaissant lors du mélange de la résine et des fibres par un bon dégazage. Une amélioration des propriétés mécaniques est encore possible en orientant les fibres dans la direction de sollicitation mécanique.

#### 1-3-1 Les techniques expérimentales utilisées

##### a- Le dégazage

Pour des viscosités inférieures à 2000 mPa.s, le dégazage se fait à l'aide d'un vide primaire ( $10^3$  Pa) et sans intervention mécanique extérieure. Pour ce faire, le mélange est placé dans une étuve sous vide [12] pendant 15 minutes, à 25°C.

Lorsque la viscosité du mélange est supérieure à 2000 mPa.s et dans le cas de résines dont la durée d'utilisation est suffisamment longue (comme la résine AY105 qui possède un temps d'utilisation largement supérieur à 4 heures, à 70°C), le mélange est chauffé sous vide (jusqu'à 70°C pendant 15 minutes). On obtient ainsi une diminution de la viscosité qui facilite le dégazage.

Cette méthode doit cependant être utilisée avec certaines précautions. Un chauffage excessif diminue de façon importante la durée d'utilisation des époxydes qui risquent donc de prendre en masse (à 70°C la durée d'utilisation de la résine LY5051 - CY 219 n'est que de 20 minutes).

Une adaptation de cette méthode a été réalisée sous forme d'un moule thermostaté (Figure 1-10).

Un circuit d'eau parcourt le moule en silicone ce qui permet de réguler la température du mélange et donc sa viscosité.

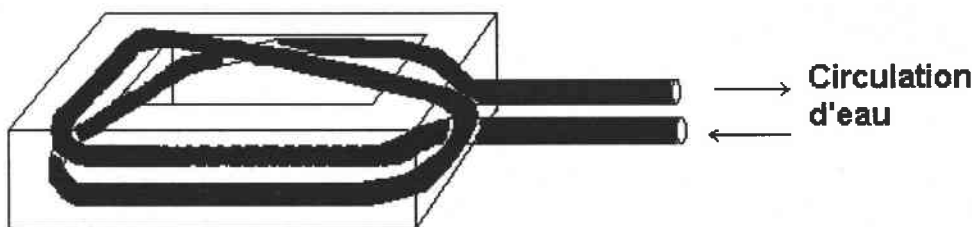
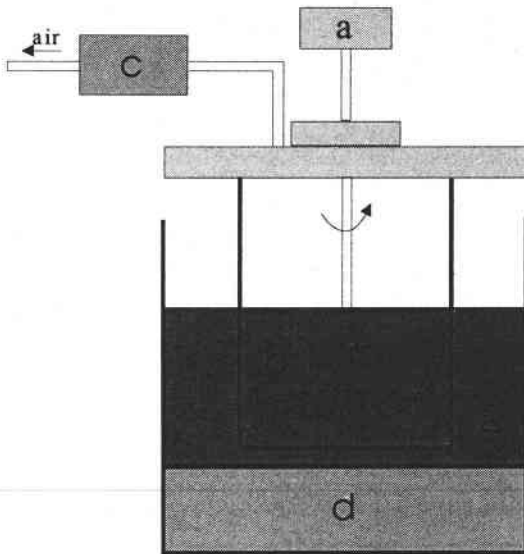


Figure 1-10: Moule thermostaté.

La viscosité du mélange étant abaissée, le moule peut être rempli de façon homogène. Il ne faut cependant jamais oublier que se posent les problèmes liés à la durée d'utilisation du mélange. Cette durée va aussi conditionner le temps d'orientation des charges qui seront ajoutées au mélange.

\*Pour des résines dont la durée d'utilisation est inférieure à une heure pour une température de 25°C, ainsi que pour les mélanges à forts taux de fibres (> 15%), le dégazage se fait en combinant une agitation mécanique à la mise sous vide. Le mélangeur sous vide utilisé (Figure 1-11) permet d'obtenir un très bon dégazage dans le cas de résines supportant mal une élévation de la température.

\*Pour les résines ARC, la phase de mise sous vide est plus délicate car l'un des solvants de la résine est très volatil et sa disparition entraîne un abaissement des propriétés mécaniques.



- (a) le moteur,
- (b) le composite à mélanger,
- (c) la pompe à vide,
- (d) l'appareil à ultrasons,
- (e) eau.

Figure 1-11: Le mélangeur sous vide

Des échantillons contenant jusqu'à 30% de fibres en volume ont pu être dégazés de façon efficace en utilisant l'appareillage ci dessus pendant 30 minutes. Pour des taux de fibres supérieurs, il est nécessaire de superposer l'action d'ultrasons à celle du mélangeur sous vide [13].

#### b- La coulée du mélange

Compte tenu de la taille des moules (Chapitre 3-2-1), le mélange une fois dégazé est injecté à l'aide d'une seringue de 10 ml dont le diamètre de sortie varie en fonction du pourcentage de fibres (Tableau 1-4).

Lorsque le taux de fibres augmente ( $> 15\%$ ), un diamètre "normal" de 1.5mm est inefficace. Il fait office de filtre et retient une bonne partie des fibres à l'intérieur de la seringue.

Pour des taux de fibres très élevés (30 - 35 %), le mélange injecté ne remplit pas le moule de manière homogène, la viscosité étant trop élevée (plus de 30 000 mPa.s pour un gradient de  $10 \text{ s}^{-1}$ ). Il faut alors incliner le moule ou utiliser une table vibrante [14]. Cette dernière méthode est la plus efficace.

Diamètre (mm) / % de fibres	5	10	15	20	25	30	35
1,5	X	X	X	X			
5				X	X	X	
14						X	X

Tableau 1-4: Diamètres de sortie des seringues.

Une attention particulière est portée aux paramètres de coulée afin d'obtenir une bonne reproductibilité de l'écoulement du mélange (importance de l'effet fontaine: Figure 1-12).

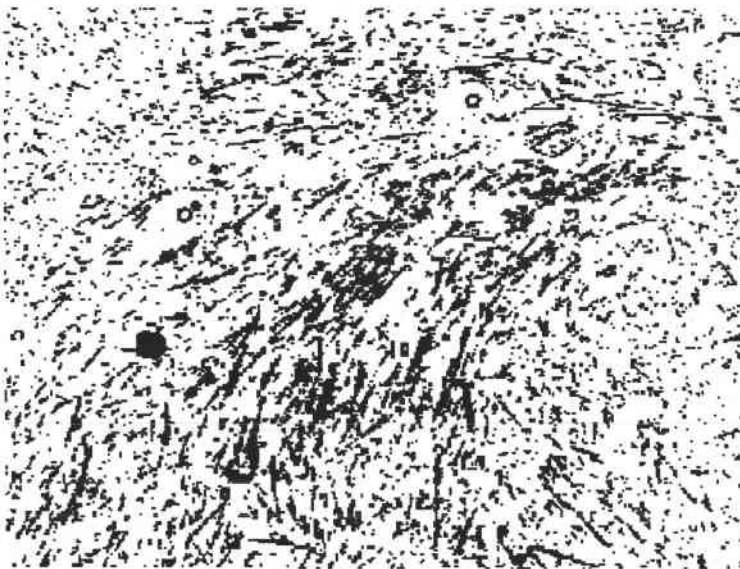


Figure 1-12: L'effet fontaine lors de l'injection.

Une fois le mélange (résine + durcisseur + fibres) réalisé, il est injecté suivant un angle donné par rapport au moule. Dans le cas d'un moule de forme carrée, une injection verticale

favorise une répartition angulaire isotrope des fibres tandis qu'une injection parallèle au plan du moule induit une certaine anisotropie d'orientation dans le matériau (chapitre 3-2-1).

### 1-3-2 Influence des méthodes d'élaboration sur l'orientation

L'étude est effectuée avec la résine LY 5052 / HY 5052, des fibres T300 mld ensimées, des fibres T300 mld non ensimées et des fibres T300 calibrées ensimées. L'influence des différents paramètres de préparation sur la qualité de l'échantillon final est évaluée en fonction du facteur d'orientation (chapitre 2).

#### a- Influence de l'homogénéisation sous vide

Le mélange sous vide, pendant environ 30mn, de la résine et des fibres a pour effet de lisser la courbe exprimant le facteur d'orientation ( $F_p$ ) en fonction du taux de fibres (Figure 1-13). Chaque point du graphe est la moyenne de cinq mesures. Le lissage de la courbe exprime une plus grande reproductibilité des résultats. Cet effet, qui s'explique par une meilleure homogénéité du mélange, est plus remarquable pour les fibres T300 mld que pour les fibres T300 calibrées (coupées).

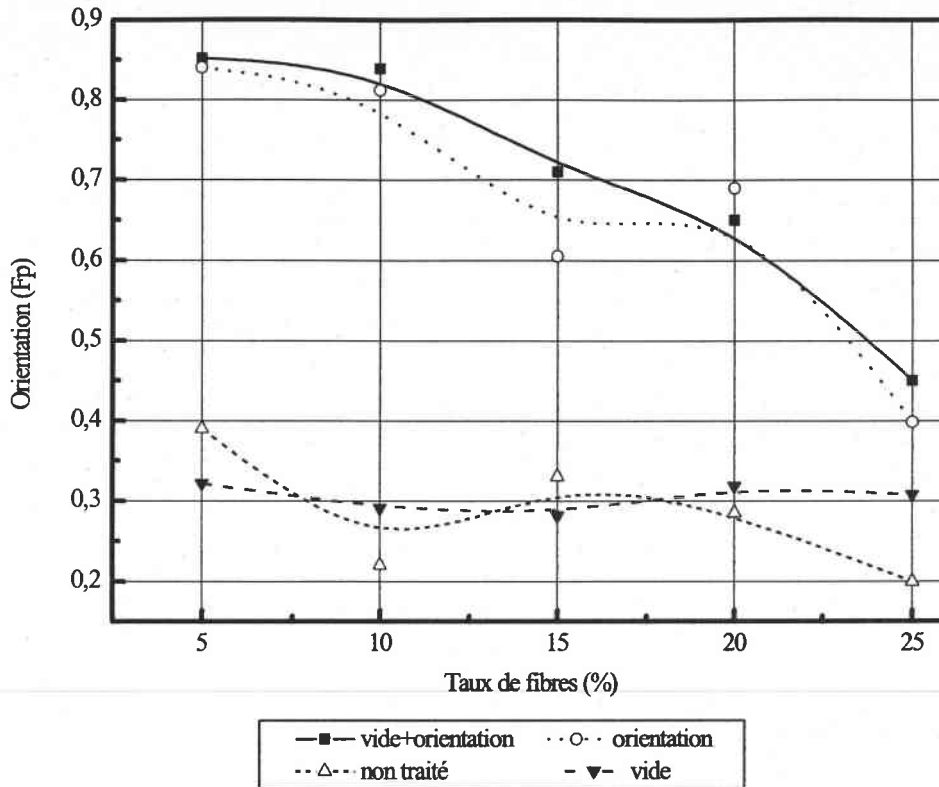


Figure 1-13: Facteur d'orientation en fonction du taux de fibres T300 mld et calibrées.

Le mélange sous vide permettant d'évacuer les bulles d'air, il y a une diminution de la porosité du matériau (Tableau 1-5). L'effet est le plus marqué avec les fibres T300 mld. De par leur mode de production, elles ont tendance à se présenter sous forme d'agglomérats (Figure 1-7). Le mélange sous vide va casser ces agrégats et on aboutit à un mélange plus homogène. Au bout de 30 mn dans le mélangeur, il n'y a plus de différences significatives entre les fibres broyées et calibrées. L'hypothèse précédente est donc confirmée. L'homogénéisation des mélanges avec fibres coupées se fait plus facilement que celle des fibres T300 mld. La coupe donnant des longueurs de fibres plus faible (Figure 1-2).

% fibres / Mode de préparation	0	5	10	15	20	25	30
Air libre	0,002	0,0089	0,014	0,025	0,035	0,044	0,072
Sous vide	0,00014	0,00016	0,0029	0,017	0,024	0,035	0,051

Tableau 1-5: Porosité du matériau composite (résine ARC 40/32).

### b- Effet de l'ensimage des fibres sur la mise en forme.

L'ensimage des fibres, par un polymère compatible avec la résine époxyde, doit améliorer la cohésion fibre - matrice. Il aura cependant un effet négatif sur le facteur d'orientation des matériaux injectés (Figure 1-14).

Pour un gradient de  $100 \text{ s}^{-1}$ , dans la résine ARC 40/32, avec 20% de fibres  $200\mu\text{m}$  non ensimées, la viscosité est de  $2314 \text{ mPa.s}$  (Figure 1-15). En utilisant des fibres  $200\mu\text{m}$  ensimées, la viscosité est de  $2940 \text{ mPa.s}$ . Cette observation est valable pour tous les gradients étudiés et quelque soit la concentration en fibres (Annexe 2). L'ensimage a donc pour effet d'augmenter la viscosité du mélange fibre - résine.

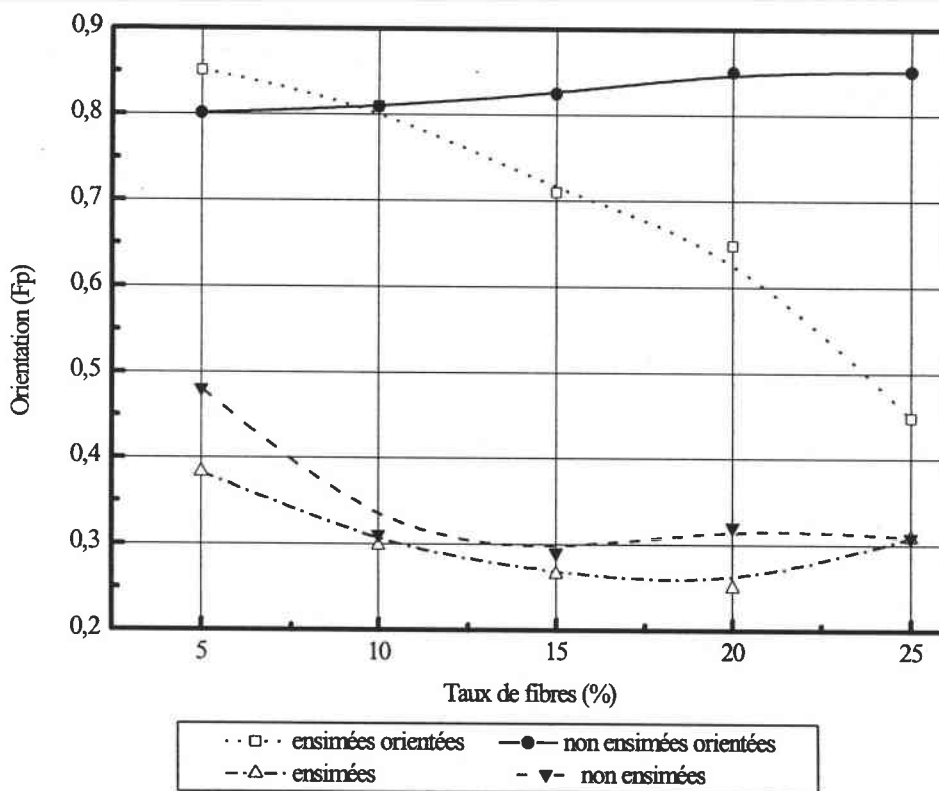


Figure 1-14: Effet de l'ensimage sur le facteur d'orientation du matériau.



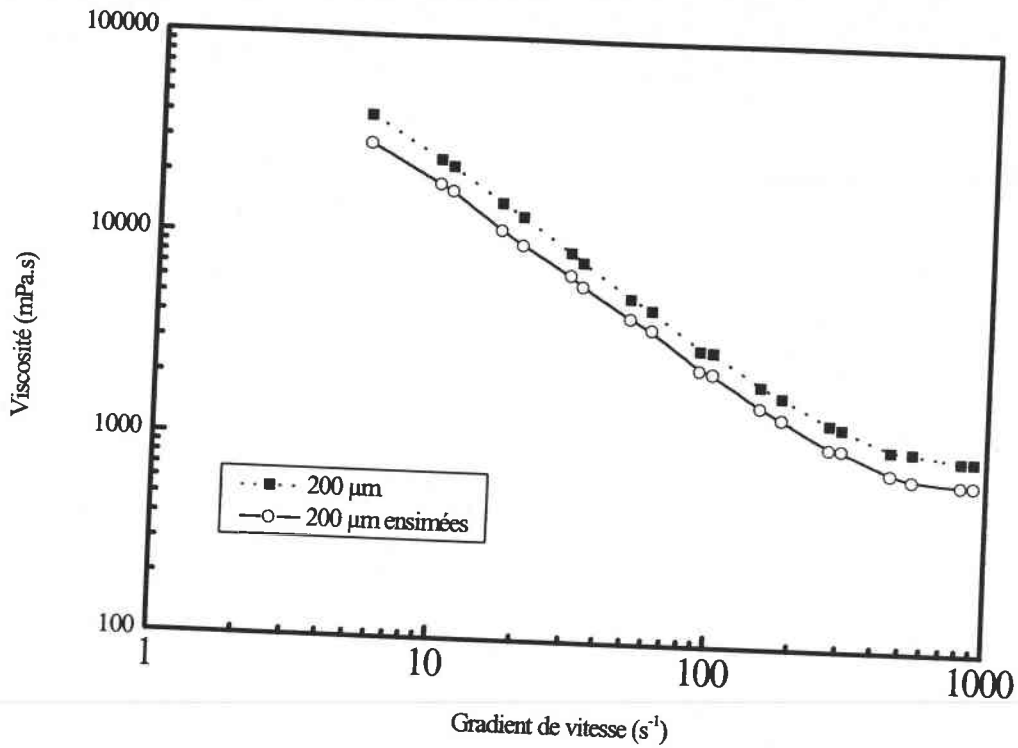


Figure 1-15: Effet de l'ensimage sur la viscosité d'un mélange ARC 40/32, 20% de fibres.

### c- Influence de la température d'élaboration.

Tout comme la préparation sous vide, une élévation de la température a pour effet de diminuer la porosité du matériau mais de façon moins marquée. Lorsque le taux de fibres augmente, cette méthode montre vite ses limites. Par contre, au niveau du facteur d'orientation une augmentation de la température jusqu'à 70/80°C provoque une agitation thermique dans le matériau qui perturbe l'arrangement spatial des fibres (figure 1-16).

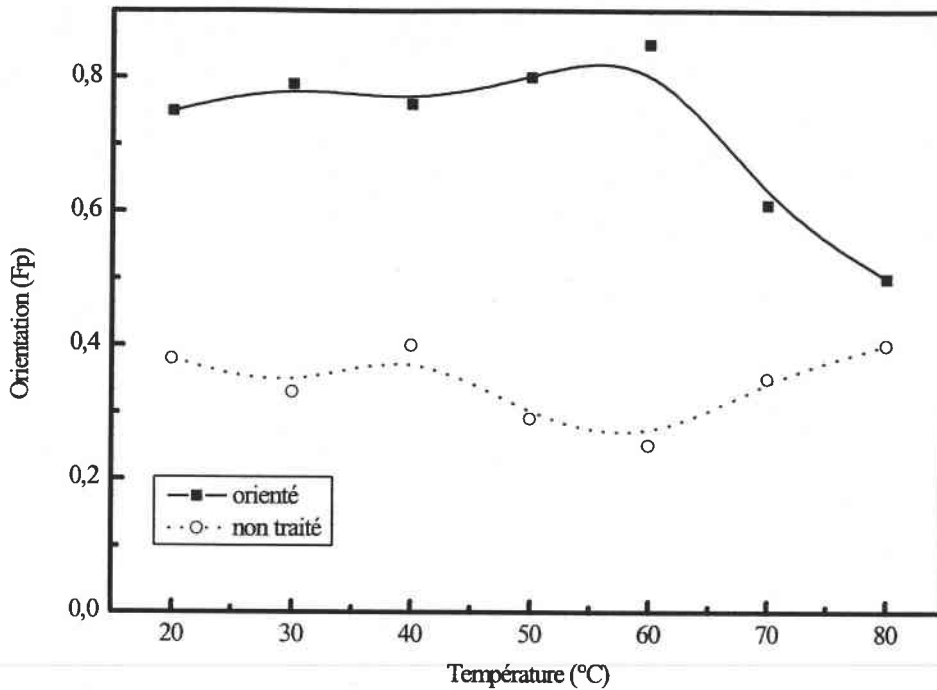


Figure 1-16: Evolution du facteur d'orientation avec la température.

#### 1-4 Conclusion

Les propriétés de tous les constituants du mélange ont été prises en compte et leurs influences sur le composite final discutées.

Les résines ARC supportent moins bien les augmentations de température que les araldites. Leur mise en forme est facilitée par leur faible viscosité ce qui permet de faire croître le taux en fibres.

Les différences entre fibres broyées et coupées d'une part et entre les fibres ensimées et non ensimées d'autre part, ont été mises en évidence. Ces différences seront encore affinées au cours de ce travail. Un appareillage et une méthodologie ont été mis au point afin d'obtenir un matériau final homogène avec des caractéristiques reproductibles. L'étude des paramètres de mise en forme a été réalisée. Elle montre que le principe d'une forte élévation de la température pour fluidifier le mélange doit être abandonné car il réduit le temps d'utilisation.

Pour la suite, les fibres et la résine sont mélangées sous vide pendant 30mn. On rajoute ensuite le durcisseur et on continue à mélanger toujours sous vide pendant 10 mn. Le mélange composite est alors injecté à l'aide d'une seringue, sous un angle donné, dans le moule.

### **1-5 Bibliographie**

- [1] Reyne M., "Technologie des composites", Hermés (1990).
- [2] Gay D., "Matériaux composites", Hermés, (1991).
- [3] Pilato L.A., Michno M.J., "Advanced composite materials", Springer Verlag (1995).
- [4] Brochard F., Di Meglio J.M., Quere D., "Mouillage d'une fibre s'enfonçant dans un bain liquide", Comptes rendus de l'académie des sciences (1990), Vol 311 n°13, 1473 - 1478.
- [5] TORAYCA, Toray Industries Inc., Japan.
- [6] THORNEL, Amoco Performance Products Inc., USA.
- [7] S.A. Apply Carbon, Languidic, France.
- [8] CIBA - GEIGY, Zundel Kohler Produits Chimiques, Illzach, France.
- [9] ARC, Tragny, France.
- [10] Van Krevelen D.W., "Properties of Polymers" Elsevier (1976).
- [11] Groupe Français d'étude et d'applications des polymères "Volume 7: Matériaux composites à base de polymères" GFP 1989.
- [12] Etuve LMIM ref. LP40312, Hongrie.
- [13] Appareil à ultrasons TESLA ref. UC006DM1, Tchécoslovaquie.
- [14] Table vibrante RETSCH Gmbh and Co., ref. AS200 Basic, Haan, Germany.

## **CHAPITRE 2:**

# **LE FACTEUR D'ORIENTATION**

## 2-A MODELISATION ET DETERMINATION EXPERIMENTALE DE L'ORIENTATION DES FIBRES.

Décrire l'orientation des fibres dans un matériau composite doit permettre de relier le facteur d'orientation à d'autres propriétés physiques, mécaniques, rhéologiques...

Ceci peut se faire de deux manières:

- détermination d'un facteur d'orientation (nombre compris entre -1 et 1). De par sa nature cette approche est assez restrictive car elle ne contient que peu d'informations spatiales.

- la méthode tensorielle. Elle utilise la distribution en orientation bi ou tridimensionnelle des fibres. Cette fonction de distribution des orientations (FDO) est en général complexe. Elle sera fréquemment approximée par une fonction type (exponentielle, escalier...) et/ou assimilée à un paramètre de la distribution (largeur du pic,...).

Pour déduire une fonction tridimensionnelle de mesures microscopiques, il faut connaître la longueur exacte des fibres. Ces analyses sont accessibles pour des fibres bien calibrées mais deviennent difficiles dans le cas de fibres de longueurs variables.

### 2-A-1 Modèle initial.

Les premiers modèles d'orientation, développés par Folgar et Tucker [2], sont basés sur l'équation de Jeffery [1] décrivant la rotation de fibres dans une suspension diluée. Jeffery a déterminé l'équation du mouvement d'une particule ellipsoïdale dans un écoulement laminaire parfait (flux de Stokes) pour un liquide newtonien (équation 2-A-1).

Par la suite, l'introduction de la notation tensorielle a permis d'étendre la méthode à des concentrations plus élevées en fibres et d'atteindre une distribution tridimensionnelle (Advani et Tucker [3]).

#### 2-A-1-1 Principe des modèles basés sur l'équation de Jeffery [1].

(a) Hypothèses fondamentales du modèle de Jeffery.

- particules ellipsoïdales;
- écoulement laminaire parfait (flux de Stokes);
- liquide newtonien;
- solution très diluée.

L'équation du mouvement de la fibre dans ces conditions est:

$$\dot{\mathbf{p}} = -\frac{1}{2} \mathbf{p} \cdot (\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{p}) + \frac{1}{2} \mathbf{p} \cdot (\dot{\boldsymbol{\gamma}} \cdot \mathbf{p} - \frac{\dot{\boldsymbol{\gamma}}}{\mathbf{p} \cdot \mathbf{p}} \mathbf{p} \cdot \mathbf{p}) \quad (2-A-1)$$

avec:  $\mathbf{p}$  = vecteur orientation de la fibre  $\mathbf{p} = \begin{pmatrix} p_x \\ p_y \\ p_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin\theta \cos\phi \\ \sin\theta \sin\phi \\ \cos\theta \end{pmatrix} \quad (2-A-2)$

$\boldsymbol{\omega}$  = vitesse angulaire avec  $\omega_{ij} = \frac{dv_j}{dx_i} - \frac{dv_i}{dx_j}$ ,

$v_i$  étant les composantes du champ de vitesse;

$\dot{\boldsymbol{\gamma}}$  = gradient de vitesse et  $|\dot{\boldsymbol{\gamma}}|$  l'amplitude du tenseur des déformations;

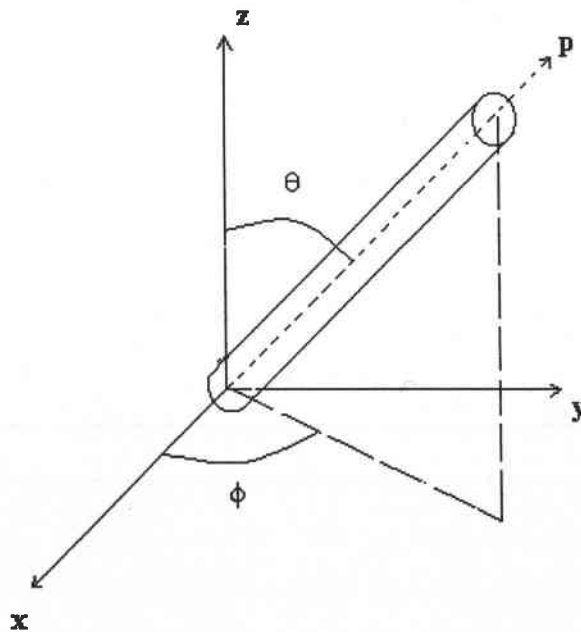


Figure 2-A-1: Représentation du vecteur orientation  $\mathbf{p}$  et des angles  $\theta$  et  $\phi$ .

(b) Modèles dérivés de celui de Jeffery.

Le modèle de Jeffery a dans un premier temps été étendu par Mason et Manley [4] à des particules de géométrie différente. Pour quantifier l'action des fibres, ces auteurs font intervenir le rapport de forme équivalent  $r_e$  [5] dans l'expression du facteur de forme.

$$\lambda = \frac{r_e^2 - 1}{r_e^2 + 1}. \quad (2-A-3)$$

Ce facteur est rajouté dans (2-A-1) pour conduire à la relation

$$\dot{p} = -\frac{1}{2} * (\omega * p) + \frac{1}{2} * \lambda * (\dot{\gamma} * p - \frac{\dot{\gamma}}{p * p * p}). \quad (2-A-4)$$

Sur cette base, on peut citer les extensions suivantes:

(b1) Folgar et Tucker [2]:

- hypothèses de base de Jeffery;
- concentrations plus élevées en fibres;
- fibre cylindrique très longue par rapport au diamètre avec un grand facteur de forme ( $l/d > 10$ );
- introduction du terme supplémentaire:

$$- C_1 * |\dot{\gamma}| * \frac{1}{\psi} * \frac{d\psi}{dp} \quad (2-A-5)$$

dans (2-A-4).

\*  $C_1$  est une constante qui permet d'introduire les interactions entre les fibres.

\*  $\psi$  est la fonction de distribution des fibres dans l'échantillon considéré. Elle doit respecter des conditions qui seront décrites ultérieurement.

En ce qui concerne la constante  $C_1$ , Folgar et Tucker [2] proposent pour expression théorique

$$C_1 = \frac{1}{2} (\overline{\Delta\phi})^2 * (l/d)^2 * c. \quad (2-A-6)$$

$l$  = longueur des fibres;

$d$  = diamètre;

$c$  = concentration;

$\overline{\Delta\phi}$  = variation angulaire moyenne de la fibre.

En pratique, le coefficient  $C_1$  est déterminé expérimentalement par

$$C_1 = \frac{K}{\frac{a_c}{l}} \quad (2-A-7)$$

$a_c$  = espacement moyen entre les fibres;

$l$  = longueur des fibres;

$K$  = constante de proportionnalité.

$a_c$  et  $l$  sont notamment déterminés par analyse d'images.

Exemple: en cisaillement simple ou en élongation uniaxiale, pour des fibres fortement orientées (fibres parallèles entre elles, d'où interactions faibles) le coefficient  $C_1$  vaut 0.01. Pour une distribution totalement aléatoire, le coefficient  $C_1$  est égal à 1.

Remarque: dans certains travaux le terme  $C_1 * \dot{\gamma}$  est remplacé par  $Dr$  défini comme la diffusion en rotation [2].

La fonction de distribution  $\psi(\theta, \phi)$  possède les propriétés suivantes:

\*  $\psi(p) = \psi(-p)$ , la fonction est paire, ce qui correspond à la condition d'indiscernabilité des extrémités des fibres. Cela équivaut à :

$$\psi(\theta, \phi) = \psi(\pi - \theta, \phi + \pi); \quad (2-A-8)$$

\* relation de normalisation, toute fibre ayant une orientation :

$$\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \psi(\theta, \phi) \sin\theta \partial\theta \partial\phi = 1; \quad (2-A-9)$$

\* équation de continuité :

$$\frac{d\psi}{dt} = -\nabla * (\psi * \omega) + Dr * \nabla^2 \psi. \quad (2-A-10).$$

La probabilité de trouver une fibre dans l'intervalle  $[\phi_1, \phi_2]$  et  $[\theta_1, \theta_2]$  est définie par :



$$P(\theta_1 \leq \theta \leq \theta_2, \phi_1 \leq \phi \leq \phi_2) = \int_{\theta_1, \phi_1}^{\theta_2, \phi_2} \psi(\phi, \theta) \partial\phi \partial\theta. \quad (2-A-11)$$

Compte tenu de ces apports, l'équation du mouvement selon Folgar et Tucker [2] devient :

$$\dot{\rho} = -\frac{1}{2} * (\omega * \rho) + \frac{1}{2} * \lambda * (\dot{\gamma} * \rho - \frac{\dot{\gamma}}{\rho * \rho * \rho}) - C_1 * |\dot{\gamma}| * \frac{1}{\psi} * \frac{d\psi}{d\rho} \quad (2-A-12)$$

(b2) Des travaux plus récents sont basés sur des améliorations du modèle de Folgar et Tucker [2]. On citera notamment ceux de Gupta et Wang [6] dont le modèle sert toujours de référence et dont de nombreuses méthodes actuelles de simulation sont dérivées.

### 2-A-1-2 Influence de la concentration en fibres.

Sur la base du rapport entre diamètre et longueur des fibres, on peut caractériser les régimes suivants en fonction de la fraction volumique de fibres  $V_f$  (annexe 1):

(a) régime dilué ( $V_f \ll (d/l)^2$ ): les interactions entre fibres sont rares et le mouvement des fibres est totalement décrit par l'équation de Jeffery.

(b) régime semi - dilué ( $(d/l)^2 \ll V_f \ll d/l$ ) (ou semi - concentré pour d'autres auteurs): les interactions sont plus nombreuses mais restent hydrodynamiques (Dinh et Armstrong [9]). Les variations d'orientation dues aux contacts mécaniques entre fibres ne sont pas significatives [7]. La modélisation est néanmoins plus difficile dans ce régime et un terme de diffusion a été introduit [7] pour décrire les effets des interactions hydrodynamiques lors de l'orientation des fibres.

Folgar et Tucker [2] modélisent les variations en orientation du fait des interactions fibre - fibre. Ils considèrent que ces interactions peuvent être décrites par le terme  $C_1 * \dot{\gamma}$ . La diffusion est alors représentée par un tenseur du second ordre [8]. Si la probabilité de variation de l'orientation est la même dans toutes les directions, alors cette diffusion est un scalaire.

(c) régime concentré: pour les fortes concentrations en fibres (suspension concentrée:  $d/l \ll V_f \ll 1$ ), les interactions fibre - fibre se traduisent par une orientation

différente de celle prédite par l'équation de Jeffery. La nature et l'importance des interactions fibre-fibre vont dépendre de la fraction volumique  $V_f$  des fibres en suspension.

Dans ces suspensions, les plus importantes commercialement, le mouvement d'une fibre individuelle ne dépendra plus seulement de sa position initiale et de l'écoulement du liquide comme pour une suspension diluée.

Les fibres individuelles obéissent à l'équation de Jeffery pendant un temps court puis se réorientent rapidement suivant un autre angle. Ces soudaines réorientations sont causées par les interactions entre fibres, ce qui tend à rendre l'orientation aléatoire.

Comme l'orientation d'une fibre n'est pas définie de façon univoque par l'écoulement, la fonction densité de probabilité  $\psi(\theta, \phi)$ , appelée fonction de distribution des orientations (FDO), est utilisée pour décrire la statistique d'orientation des fibres.

### 2-A-1-3 Application dans le cas d'un mouvement planaire

Lors de la rotation des fibres dans le plan ( $\phi, \theta = \pi/2$ ), l'évolution en fonction du temps de la distribution  $\psi_\phi$  est discrétisée. La fraction de fibres dont l'orientation est comprise dans l'intervalle  $[\phi, \phi+d\phi]$  est égale à  $\psi_\phi d\phi$ . Au bout d'un temps très court  $dt$ , cette quantité varie de  $((\dot{\psi}_\phi)_\phi - (\dot{\psi}_\phi)_\phi) dt$ .

$\dot{\phi}$  est l'équation du mouvement d'une fibre pour de grands facteurs de forme (hypothèses de Folgar et Tucker). Elle a pour expression:

$$\dot{\phi} = \left( -\sin\phi * \cos\phi * \frac{\partial v_x}{\partial x} - \sin^2\phi * \frac{\partial v_x}{\partial y} + \cos^2\phi * \frac{\partial v_y}{\partial x} + \sin\phi * \cos\phi * \frac{\partial v_y}{\partial y} \right) - \frac{C_1 \dot{\gamma}}{\psi_\phi} * \frac{\partial \psi_\phi}{\partial \phi} \quad (2-A-13)$$

et permet d'obtenir l'équation d'évolution de  $\psi_\phi$  en fonction du temps (2-A-14) grâce à la condition de continuité.

$$\begin{aligned} \frac{\partial \psi_\phi}{\partial t} = & C_1 * \dot{\gamma} * \frac{\partial^2 \psi_\phi}{\partial \phi^2} - \frac{\partial}{\partial \phi} \left( \psi_\phi \left( -\sin\phi * \cos\phi * \frac{\partial v_x}{\partial x} \right. \right. \\ & \left. \left. - \sin^2\phi * \frac{\partial v_x}{\partial y} + \cos^2\phi * \frac{\partial v_y}{\partial x} + \sin\phi * \cos\phi * \frac{\partial v_y}{\partial y} \right) \right) \end{aligned} \quad (2-A-14)$$

On remarquera pour ce modèle que:

- pour tout type d'écoulement, la variation totale de  $\psi_\phi$  dans une suspension est indépendante du taux de déformation;
- quel que soit le type d'écoulement, il existe un état d'orientation privilégié indépendant des conditions initiales;
- l'addition du taux d'interaction  $\frac{\partial^2 \psi_\phi}{\partial \phi^2}$  élimine la réversibilité cinétique de l'orientation des fibres. Si on inverse l'écoulement, l'orientation des fibres ne revient plus à son état initial (du fait des interactions fibre - fibre).

#### 2-A-1-4 Application du modèle de Jeffery et des modèles dérivés

Matsuoka et al. [10] utilisent le modèle de Folgar et Tucker [2] pour prédire l'orientation des fibres lors du moulage. Ils déterminent une corrélation entre le facteur d'orientation planaire et les coefficients d'expansion thermique.

Ce modèle convient à une suspension concentrée en fibres pour des facteurs de forme supérieurs à 10. La rotation d'une fibre dans le plan étant régie par l'équation (2-A-14).

En tenant compte des conditions d'indiscernabilité et de normalisation précédentes, l'introduction d'un paramètre d'orientation planaire conduit à décrire l'orientation du système de manière unique.

Dans le cas d'un composite, le calcul des propriétés du mélange implique de moyenniser les propriétés des deux phases (les fibres introduisant une anisotropie dans le matériau). Les propriétés du composite sont ainsi données par la moyenne des propriétés unidirectionnelles (par exemple, la conductivité thermique). Le résultat est pondéré par la fonction de distribution de l'orientation.

Altar et al. [11] appliquent les résultats précédents à un écoulement homogène.

#### 2-A-2 Modèle statistique de la fonction de distribution en orientation (FDO)

Dans les modèles de type Jeffery, les hypothèses de base ne portent que sur le mouvement d'une fibre et les interactions avec ses voisines par le biais de la fonction de distribution. Les modèles suivants apparaissent plus complets.

On se limitera dans ce paragraphe aux modèles utilisant les modifications proposées par Advani [3]. On retiendra en particulier les travaux de Ranganathan et Advani [12] qui se placent dans le cas d'un système à trois dimensions respectant les conditions suivantes:

- la concentration spatiale des fibres est homogène;
- les fibres sont cylindriques, de même longueur, de même diamètre;
- le milieu est un fluide newtonien incompressible;
- l'inertie et l'agitation du mélange sont négligeables;
- les particules sont suffisamment grandes pour que le mouvement brownien soit ignoré;
- il n'y a pas d'actions extérieures sur la suspension.

Dans le cas de flux homogènes, la condition de continuité (2-A-10) conduit à:

$$\frac{\partial \psi(\mathbf{p}, t)}{\partial t} = - \frac{\partial (\mathbf{p}_i \dot{\psi}(\mathbf{p}, t))}{\partial p_i} \quad (2-A-15)$$

Cette équation et la connaissance d'une expression correcte de  $\dot{\mathbf{p}}_i$  fournissent une information complète sur l'orientation des fibres. Selon la nature planaire ou spatiale du problème il y a lieu de tenir compte des conditions initiales qui seront:

$$\psi_\theta(\theta, t=0) = 1/\pi \quad (\text{cas planaire}) \quad (2-A-16)$$

$$\psi(\phi, \theta, t=0) = 1/4\pi \quad (\text{cas spatial}) \quad (2-A-17)$$

A l'aide de ces conditions initiales et en considérant  $\dot{\mathbf{p}}_i$  de la forme

$$\dot{\mathbf{p}}_i = \bar{u}_{i,q} * p_q - \bar{u}_{kq} p_q p_k p_i \quad (2-A-18)$$

avec  $\bar{u}_{ij}$  le tenseur gradient de vitesse, la résolution de l'équation (2-A-15) donne une nouvelle expression de la FDO:

$$\psi(\mathbf{p}, t) = \frac{1}{4\pi} * (\bar{\Delta}^+ \bar{\Delta} * \mathbf{p}\mathbf{p})^{-\frac{3}{2}} \quad (2-A-19)$$

$\bar{\Delta}$  étant le tenseur du gradient de déformation (avec  $\bar{\Delta}^+$  sa transposée) défini par

$$\bar{\Delta}_{ij} = \frac{\partial x_i}{\partial x_j} \quad (2-A-20)$$

$x_i$  = position du vecteur à  $t=0$ ;

$x_j$  = position du vecteur au temps  $t$ .

Dans le cas d'une distribution planaire cette expression se réduit à

$$\psi_\theta(\rho, t) = \frac{1}{\pi} (\Delta^+ \bar{\Delta} * \rho\rho)^{-1} \quad (2-A-21)$$

### 2-A-2-1 La fonction de distribution planaire

Dans le cas bidimensionnel, le vecteur  $\mathbf{p}$  est donné par:

$$\mathbf{p} = \begin{pmatrix} p_1 \\ p_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix} \quad (2-A-22)$$

et, si l'écoulement est homogène, le tenseur du gradient de vitesse est

$$\bar{u}_{ij} = \begin{pmatrix} c & c_1 \\ c_2 & -c \end{pmatrix}. \quad (2-A-23)$$

La trace du tenseur  $\bar{u}_{ij}$  est nulle afin de satisfaire la condition de continuité ( $c$ ,  $c_1$  et  $c_2$  sont des constantes).

Les mouvements dans le liquide seront décrits en utilisant les éléments du tenseur  $\bar{u}_{ij}$  dans les équations différentielles du premier ordre

$$\frac{\partial x_1}{\partial t} = c * x_1 + c_1 * x_2; \quad (2-A-24)$$

$$\frac{\partial x_2}{\partial t} = -c * x_2 + c_2 * x_1; \quad (2-A-25)$$

avec les conditions initiales :  $x_1 = x_1'$  et  $x_2 = x_2'$  à  $t=0$ .

A l'aide du tenseur gradient de vitesse  $\bar{u}_{ij}$ , la résolution de ces équations fournit le tenseur gradient des déformations  $\bar{\Delta}_{ij}$ . Dans le cadre de cette résolution, le signe du terme  $(c^2 + c_1 c_2)$  permet d'introduire les différents écoulements (rotation, cisaillement et élongationnel).

La fonction de distribution planaire s'écrit alors:

$$\psi_{\theta}(\theta, t) = \frac{1}{\pi} ((\Delta_{11}^2 + \Delta_{21}^2) p_1^2 + (\Delta_{11}\Delta_{12} + \Delta_{21}\Delta_{22}) 2p_1 p_2 + (\Delta_{12}^2 + \Delta_{22}^2) p_2^2)^{-1} \quad (2-A-26)$$

### 2-A-2-2 La fonction de distribution tridimensionnelle

Le vecteur  $p$  qui caractérise une fibre a ses coordonnées données par (2-A-2). Le tenseur gradient de vitesse est maintenant

$$\bar{U}_{ij} = \begin{vmatrix} c & c_1 & c_3 \\ c_2 & -c & c_4 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \quad (2-A-27)$$

Remarque: les types de flux qui nous intéressent sont ceux que l'on rencontre dans les **procédés d'injection**. Ils se modélisent comme des écoulements entre deux plans séparés par une faible épaisseur. On se retrouve alors dans le cas bidimensionnel. Les composantes de (2-A-27) représentant la vitesse planaire sont  $c_3$  et  $c_4$ .

Au lieu de prédire l'orientation des fibres dans un flux complexe, la fonction de distribution est résolue plusieurs fois le long du parcours de la particule en considérant tous les tenseurs des gradients de vitesse locaux. Une solution similaire obtenue avec l'équation de Jeffery est proposée par Jackson et al. [13] dans le cas d'un flux à deux dimensions.

A partir du tenseur gradient de vitesse  $\bar{U}_{ij}$ , on établit les deux équations différentielles non homogènes (2-A-28) et (2-A-29):

$$\frac{\partial x_1}{\partial t} - c * x_1 - c_1 * x_2 = c_3 * x_3, \quad (2-A-28)$$

$$\frac{\partial x_2}{\partial t} - c_2 * x_1 + c * x_2 = c_4 * x_3. \quad (2-A-29)$$

Les conditions initiales retenues pour les positions des vecteurs sont  $x_1 = x_1'$  et  $x_2 = x_2'$  à  $t = 0$ .

Tout comme dans le cas bidimensionnel, les équations (2-A-28) et (2-A-29) conduisent au tenseur des gradients de déformation (2-A-30).

$$\bar{\Delta}_{ij} = \begin{vmatrix} (\Delta_{11})_{2D} & (\Delta_{12})_{2D} & \Delta_{13} \\ (\Delta_{21})_{2D} & (\Delta_{22})_{2D} & \Delta_{23} \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix} \quad (2-A-30)$$

Le terme  $(c^2+c_1c_2)$  permet comme précédemment d'introduire différents types d'écoulement (voir Advani [3]).

De la résolution des différentes équations on déduit la FDO. En utilisant l'expression (2-A-19), la fonction de distribution tridimensionnelle s'écrit:

$$\begin{aligned} \psi(\theta, \phi, t) = & \frac{1}{4\pi} [(\Delta_{11}^2 + \Delta_{21}^2 + \Delta_{31}^2)p_1^2 + (\Delta_{11}\Delta_{12} + \Delta_{21}\Delta_{22} + \Delta_{31}\Delta_{32})^2 p_1 p_2 + (\Delta_{11}\Delta_{13} + \Delta_{21}\Delta_{23} + \Delta_{31}\Delta_{33})^2 p_1 p_3 \\ & + (\Delta_{12}^2 + \Delta_{22}^2 + \Delta_{32}^2)p_2^2 + (\Delta_{12}\Delta_{13} + \Delta_{22}\Delta_{23} + \Delta_{32}\Delta_{33})^2 p_2 p_3 + (\Delta_{13}^2 + \Delta_{23}^2 + \Delta_{33}^2)p_3^2]^{-\frac{3}{2}} \end{aligned} \quad (2-A-31)$$

La résolution nécessite des calculs numériques complexes, c'est pourquoi une méthode de simulation plus efficace (utilisant les tenseurs d'orientation établis par Hand [14]) est donnée par Advani et Tucker [3].

La représentation tensorielle d'Advani et Tucker servira de base à Mc Grath et Wille [15] pour développer une théorie du facteur d'orientation en trois dimensions.

### 2-A-3 Les tenseurs d'orientation

Les tenseurs d'orientation d'ordre 2 et 4 sont utilisés pour déterminer la fonction de distribution mais ils sont également utilisés en tant que tels pour fournir des informations sur l'orientation.

#### 2-A-3-1 Cas général

Ces tenseurs d'ordre 2 et 4 sont définis par :

$$(\bar{a}_2)_{ij} = a_{ij} = \int p_i * p_j * \psi(p) dp \quad (2-A-32)$$

$$(\bar{a}_4)_{ijkl} = a_{ijkl} = \int p_i * p_j * p_k * p_l * \psi(p) dp \quad (2-A-33)$$

où  $p$  est le vecteur définissant l'orientation de la fibre et  $\psi$  la fonction de distribution.

Dans le cas d'un mélange de  $N_f$  fibres, le tenseur d'ordre 2 se met sous la forme:

$$\bar{a}_{ij} = \frac{1}{N_f} \sum_{k=1}^{N_f} p_i^k p_j^k = \begin{vmatrix} a_{11} & a_{12} & a_{13} \\ a_{21} & a_{22} & a_{23} \\ a_{31} & a_{32} & a_{33} \end{vmatrix} \quad (2-A-34)$$

Ces tenseurs représentent les moments de la fonction de distribution. La condition de normalisation implique que  $\text{Tr}(\bar{a}_{ij})=1$ . Advani et Tucker [3] ont montré que les tenseurs obtenus sont symétriques.

La fonction de distribution est construite en utilisant les déviateurs des tenseurs d'orientation et les vecteurs d'orientation selon la séquence suivante:

$$b_{ij} = a_{ij} - \frac{1}{3} * \delta_{ij} \quad (2-A-35)$$

$$b_{ijkl} = a_{ijkl} - \frac{1}{7} * (\delta_{ij} * a_{kl} + \delta_{ik} * a_{jl} + \delta_{il} * a_{jk} + \delta_{jk} * a_{il} + \delta_{jl} * a_{ik} + \delta_{kl} * a_{ij}) + \frac{1}{35} * (\delta_{ij} * \delta_{kl} + \delta_{ik} * \delta_{jl} + \delta_{il} * \delta_{jk}) \quad (2-A-36)$$

$$f_{ij} = p_i * p_j - \frac{1}{3} * \delta_{ij} \quad (2-A-37)$$

$$f_{ijkl}(p) = p_i * p_j * p_k * p_l - \frac{1}{7} * (\delta_{ij} * p_k * p_l + \delta_{ik} * p_j * p_l + \delta_{il} * p_j * p_k + \delta_{jk} * p_i * p_l + \delta_{jl} * p_i * p_k + \delta_{kl} * p_i * p_j) + \frac{1}{35} * (\delta_{ij} * \delta_{kl} + \delta_{ik} * \delta_{jl} + \delta_{il} * \delta_{jk}) \quad (2-A-38)$$

La valeur de la fonction de distribution  $\psi(p)$  se calcule en fonction du produit des déviateurs [b2] et [b4] à l'aide des fonctions tensorielles de base données par Onat et Leckie [16].

La fonction de distribution peut dans ces conditions se mettre sous la forme d'un développement en série:



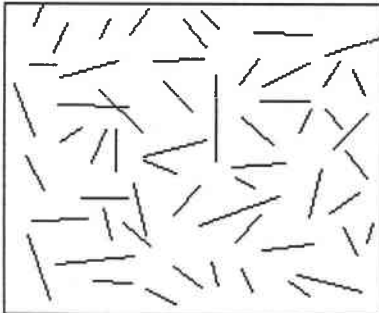
$$\psi(p) = \frac{1}{4 * \pi} + \frac{15}{8 * \pi} * (\sum_i \sum_j b_{ij} * f_{ij}(p)) + \frac{315}{32 * \pi} * (\sum_i \sum_j \sum_k \sum_l b_{ijkl} * f_{ijkl}(p)) + \dots \quad (2-A-39)$$

2-A-3-2 Le tenseur d'ordre deux

L'objectif de notre raisonnement étant d'atteindre le facteur d'orientation, il apparaît nécessaire d'établir quelques propriétés du tenseur d'ordre deux.

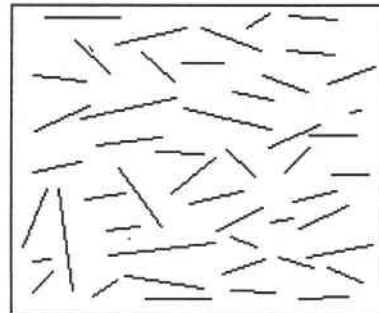
L'utilisation des tenseurs pour décrire l'orientation des fibres équivaut à approximer la FDO par un nombre fini de termes d'une série de Fourier.

**Orientation aléatoire**



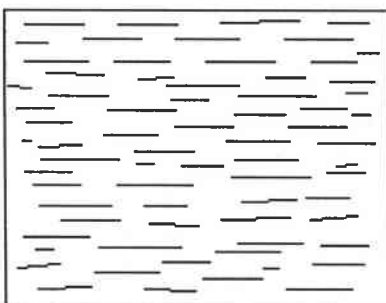
$$\bar{a}_{ij} = \begin{vmatrix} 0.5 & 0 \\ 0 & 0.5 \end{vmatrix}$$

**Orientation partielle**



$$\bar{a}_{ij} = \begin{vmatrix} 0.7 & 0 \\ 0 & 0.3 \end{vmatrix}$$

**Orientation complète**



$$\bar{a}_{ij} = \begin{vmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{vmatrix}$$

L'évolution du tenseur d'ordre 2 au cours du temps proposée par Hinch et Leal [17] se traduit par:

$$\frac{da_2}{dt} = \frac{da_{ij}}{dt} = -\frac{1}{2} * (\omega_{ik} * a_{kj} - a_{ik} * \omega_{kj}) + \frac{1}{2} * \lambda * (\dot{\gamma}_{ik} * a_{kj} + a_{ik} * \dot{\gamma}_{kj} - 2 * \dot{\gamma}_{kl} * a_{ijkl}) + \frac{1}{2} * C_1 * \dot{\gamma}_m * (\delta_{ij} - 2 * a_{ij}) \quad (2-A-40)$$

en rappelant que:  $\omega$  = vitesse angulaire;

$\dot{\gamma}$  = gradient de vitesse;

$C_1$  = constante qui permet d'introduire les interactions entre les fibres.

Pour chaque tenseur d'orientation du second ordre, trois valeurs propres et trois vecteurs propres sont calculées. La direction d'orientation maximale et le degré d'orientation dans cette direction sont donnés par la valeur propre et le vecteur propre liés à la direction d'écoulement.

Pour certaines situations standards, on peut caractériser les termes du tenseur de rang 2 de la manière suivante:

(a) écoulement élongationnel plan :

- $(a_{11})$  direction de l'écoulement, composante toujours plus grande que  $(a_{22})$  et  $(a_{33})$ .
- le tenseur est toujours diagonal;
- $(a_{33}) > (a_{22})$ : la probabilité d'avoir des fibres le long de la direction 3 est plus grande que celle d'avoir des fibres perpendiculaires à la direction de l'écoulement.

(b) application aux couches minces:

En première approximation, le procédé d'injection peut être représenté comme un écoulement élongationnel en couche minces (Tucker [18]).

Comme l'orientation des fibres en couches minces est quasi - planaire ( $p_3 \ll \sqrt{p_1^2 + p_2^2}$ ), les composantes dans le plan ( $(a_{11}), (a_{12}), (a_{22})$ ) sont dominantes. Les composantes hors du plan ( $(a_{13}), (a_{23}), (a_{33})$ ) bien que faibles jouent tout de même un rôle important dans la détermination de l'orientation des fibres au voisinage de la surface.

En fonction du nombre de fibres et de l'orientation des fibres hors du plan, Tucker [18] déduit que l'écoulement est découplé de l'orientation des fibres si le canal d'éjection est assez étroit.

L'orientation des fibres est alors suffisamment dans le plan pour n'avoir aucune contribution significative sur les contraintes en cisaillement.

Ko et Youn [19] ont affiné l'étude du cas planaire.

Puisque  $(a_{ii}) = 1$  et  $(a_{ji}) = (a_{ij})$ , il ne reste que deux composantes indépendantes ( $(a_{12}) = (a_{21})$  et  $(a_{11}) + (a_{22}) = 1$ ).  $(a_{11})$  et  $(a_{12})$  sont utilisables pour définir l'état d'orientation des fibres. Si l'axe de référence est 1,  $(a_{11})$  indiquera l'importance de l'alignement des fibres selon la direction 1 et  $(a_{12})$  caractérisera la déviation entre les principales direction d'orientation des fibres et l'axe 1.

Pour comparer l'orientation de deux échantillons on utilisera la diagonale de leurs tenseurs.

#### 2-A-4 Les relations de fermeture pour le tenseur d'ordre 4

Dans le but de calculer la fonction de distribution, l'évolution avec le temps des tenseurs d'orientation ( $\bar{a}_{ij}$ ) est obtenue par une intégration de l'équation de Fokker-Planck [20]. L'expression obtenue génère un problème de fermeture, elle contient un tenseur d'orientation d'ordre supérieur ( $\bar{a}_{ijkl}$ ) inconnu. Pour pallier à cette difficulté, on introduit une relation de fermeture. Le principe est d'exprimer les tenseurs d'ordre supérieur en fonction des tenseurs d'ordre inférieur.

Quatre formes d'approximations sont couramment utilisées:

(a) *montrer que le tenseur  $[a_2]$  est une forme réduite de  $[a_4]$ :*

$$a_{ij} = \sum_{k=1}^3 a_{ijkl} \quad (2-A-41)$$

(b) *approximation de Lipscomb [21]: il s'agit de l'approximation de fermeture quadratique*

$$a_{ijkl} = a_{ij} * a_{kl} \quad (2-A-42)$$

Les termes linéaires sont omis. On ne prend en compte que le produit de tenseurs d'ordre plus faible ([22], [23]). L'approximation quadratique appliquée au tenseur d'ordre quatre entraîne une légère perte de symétrie.

(c) *approximation linéaire:*

$$a_{ijkl} = -\frac{1}{35} * (\delta_{ij} * \delta_{kl} + \delta_{ik} * \delta_{jl} + \delta_{il} * \delta_{jk}) + \frac{1}{7} * (a_{ij} * \delta_{kl} + a_{ik} * \delta_{jl} + a_{kl} * \delta_{ij} + a_{jl} * \delta_{ik} + a_{jk} * \delta_{il} + a_{il} * \delta_{jk})$$

(2-A-43)

Dans le cas bidimensionnel, l'approximation linéaire est donnée par (2-A-43) dans laquelle les coefficients numériques  $-1/35$  et  $1/7$  sont remplacés par  $-1/24$  et  $1/6$ .

L'expression (2-A-43) est qualifiée d'approximation linéaire compte tenu du fait que l'application des critères de symétrie et de normalisation ne retient que des termes linéaires dans l'équation finale.

(d) *schéma hybride:* combinaison des approximations linéaire et quadratique pondérées avec le paramètre  $f$ :

$$a_{ijkl} = (1-f) * a_{ijkl\text{linéaire}} + f * a_{ijkl\text{quadratique}} \quad (2-A-44)$$

$f$  est une fonction des invariants du tenseur d'orientation.

$f = 1$  quand toutes les fibres sont alignées.

$f = 0$  lorsque les fibres sont distribuées de manière aléatoire.

Le paramètre  $f$  apparaît comme une généralisation du tenseur de Hermans [24].

En simulation, l'approximation quadratique est la plus utilisée. Elle introduit une non linéarité dans le système, ce qui n'empêche pas d'obtenir des solutions stables. D'un autre côté, cette approximation ne préserve pas la symétrie du tenseur. Les deux composantes de l'orientation qui doivent être équivalentes peuvent être approximées de deux façons:  $(a_{1122}) \sim (a_{11}) * (a_{22})$  et  $(a_{12}) * (a_{12}) \sim (a_{12})^2$ .

L'approximation linéaire donne de bons résultats si les fibres sont aléatoires (elle est exacte pour un échantillon parfaitement aléatoire). Dans les flux en cisaillement, cette approximation est appliquée aux systèmes dilués pour des fibres à faible rapport de forme ( $l/d < 10$ ). Les résultats obtenus sont corrects. Elle est fautive si le rapport de forme tend vers l'infini. On utilisera alors le modèle de Dinh et Armstrong [9] qui utilise l'équation de Jeffery [1] avec un facteur de forme infini.

### 2-A-5 Forme numérique de la fonction de distribution et des tenseurs d'orientation

Dans ce paragraphe, on aborde la détermination de la fonction de distribution et du facteur d'orientation d'un point de vue plus pratique.

(a) La FDO planaire  $\psi_\phi$  peut être approximée par des histogrammes. Pour ce faire, on mesure l'orientation d'un grand nombre de fibres dans l'échantillon en respectant le critère fondamental: rester statistique (d'un point de vue pratique on travaillera sur près de 3000 fibres).

Dans le cas de l'orientation planaire, l'histogramme de la distribution est donné par

$$\psi(\phi_i) \approx \frac{N_i}{2\Delta\phi \sum_{j=1}^n N_j} \quad (2-A-45)$$

$N_i$  = nombre de fibres dans l'intervalle centré sur l'angle  $\phi_i$

$$\Delta\phi = \pi/n.$$

(b) Le tenseur moyen d'orientation ainsi que la FDO peuvent être approximés également à l'aide de la longueur des fibres orientées dans une direction donnée. En tenant compte de la longueur totale de fibres dans la région considérée, il vient:

$$\psi(p) = \frac{l(p)}{\sum_m l(p)_m} \quad (2-A-46)$$

$$\langle \bar{a}_{ij} \rangle = \frac{\sum_n l_n}{\sum_m l_m} p_i p_j \quad (2-A-47)$$

avec

$l$  = longueur d'une fibre;

$m$  = nombre de fibres dans la région considérée;

$l_n$  = longueur de fibres dans la direction  $n$ ;

$\mathbf{p}$  = vecteur unitaire selon l'axe principal de la fibre.

(c) Leterier [25] utilise une distribution plane pour étudier le cas du **moulage en compression**. Pour les suspensions concentrées, la FDO tridimensionnelle se déduit de  $\psi_\phi$  (FDO bidimensionnelle) par:

$$\psi(\theta, \phi) = \delta(\theta - \frac{\pi}{2}) * \psi_\phi(\phi). \quad (2-A-48)$$

Dans le cas d'un écoulement dans un moule longitudinal, l'inclinaison de la plupart des fibres par rapport à la surface est inférieure à 15 degrés. Il approxime la distribution en trois dimensions comme une distribution plane projetée dans le plan d'écoulement. La FDO planaire suffit alors pour décrire l'état d'orientation total, avec:

$$\psi_\phi(\phi) = \frac{1}{2 * \pi} + \frac{2}{\pi} * (\sum_i \sum_j b_{ij} * f_{ij}(\rho)) + \frac{8}{\pi} * (\sum_i \sum_j \sum_k \sum_l b_{ijkl} * f_{ijkl}(\rho)) + \dots \quad (2-A-49)$$

## 2-A-6 Les approximations grossières de la fonction de distribution

Afin de faire intervenir la FDO dans certaines simulations mécaniques ou autres, il est souvent intéressant de pouvoir disposer d'approximations grossières.

### 2-A-6-1 Approximation par une fonction escalier

L'approche du problème de l'orientation de Jayaraman et Kortschot [26] est basée sur les travaux antérieurs de Fukuda et Kawata [27]. La fonction densité de probabilité de la FDO à deux dimensions  $\rho(\theta)$  est introduite sous la forme:

$$\rho(\theta) = 1/\alpha \text{ pour } 0 \leq \theta \leq \alpha \text{ et } \rho(\theta) = 0 \text{ pour } \theta > \alpha \quad (2-A-50)$$

Les auteurs montrent que dans certains calculs du module d'élasticité [27] [28], le facteur d'orientation [39] contient intrinsèquement des erreurs liées aux hypothèses du calcul. L'importance de ces erreurs est fonction de la distribution en orientation des fibres.

## 2-A-6-2 Approximation par une fonction exponentielle

### (a) Utilisation d'une fonction exponentielle (à un seul paramètre)

Si la fonction de distribution en orientation des fibres est symétrique par rapport à l'axe principal d'orientation, il est alors possible de la décrire par une fonction mathématique en s'appuyant sur des données expérimentales [30].

L'orientation des fibres est décomposée en classes d'orientation selon un angle +/-  $\theta$  ( $0 < \theta < \pi/2$ ) par rapport à la direction principale des fibres. Une fonction exponentielle à un seul paramètre ajustable ( $\lambda$ ) permet alors de décrire la fonction de distribution à l'aide de la fonction densité:

$$\rho(\theta) = \lambda e^{-\lambda\theta} . \quad (2-A-51)$$

La concentration en fibres comprises entre 0 et +/-  $\theta$  est donné par la fonction cumulée:

$$F(\theta) = \int_0^{\theta} \lambda e^{-\lambda x} dx = 1 - e^{-\lambda\theta} . \quad (2-A-52)$$

La figure 2-A-2 donne un exemple de calcul de  $\rho(\theta)$  et  $F(\theta)$  pour une bonne orientation des fibres. Cette orientation est représentée par le paramètre  $\lambda$ : si  $\lambda = 20$  l'orientation est très bonne et si  $\lambda = 0.1$ , elle est mauvaise.

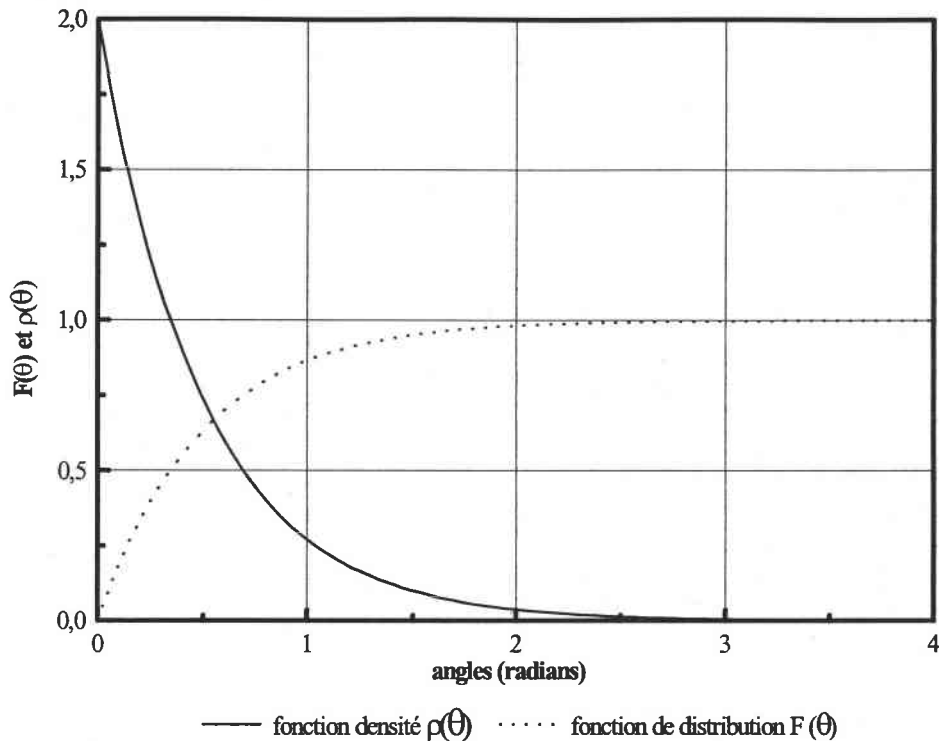


Figure 2-A-2: Fonction de distribution et fonction densité de Kacir [30]  
pour une orientation  $\lambda = 2$ .

(b) Utilisation d'une fonction exponentielle à deux paramètres

Xia et al [31] proposent d'utiliser une fonction exponentielle à deux paramètres ajustables ( $p, q$ ) pour décrire la distribution d'orientation des fibres:

$$\rho(\theta) = \frac{(\sin(\theta))^{2p-1}(\cos(\theta))^{2q-1}}{\int_{\theta_{\min}}^{\theta_{\max}} (\sin(\theta))^{2p-1}(\cos(\theta))^{2q-1} d\theta} \quad (2-A-53)$$

La fonction densité d'orientation  $\rho(\theta)$  est définie de façon à ce que  $\rho(\theta)d\theta$  représente la fonction densité de probabilité d'orientation d'une fibre entre  $\theta$  et  $\theta+d\theta$ .

Les deux paramètres ajustables  $p$  et  $q$  sont des paramètres d'épaisseur qui caractérisent  $\rho(\theta)$  à mi-hauteur ( $p \geq 1/2$  et  $q \geq 1/2$ ). La fonction de distribution cumulée devient alors:



$$F(\theta) = \int_{\theta_{\min}}^{\theta} \rho(\theta) d\theta = \frac{\int_{\theta_{\min}}^{\theta} (\sin \theta)^{2p-1} (\cos \theta)^{2q-1} d\theta}{\int_{\theta_{\min}}^{\theta_{\max}} (\sin \theta)^{2p-1} (\cos \theta)^{2q-1} d\theta}$$

(2-A-54)

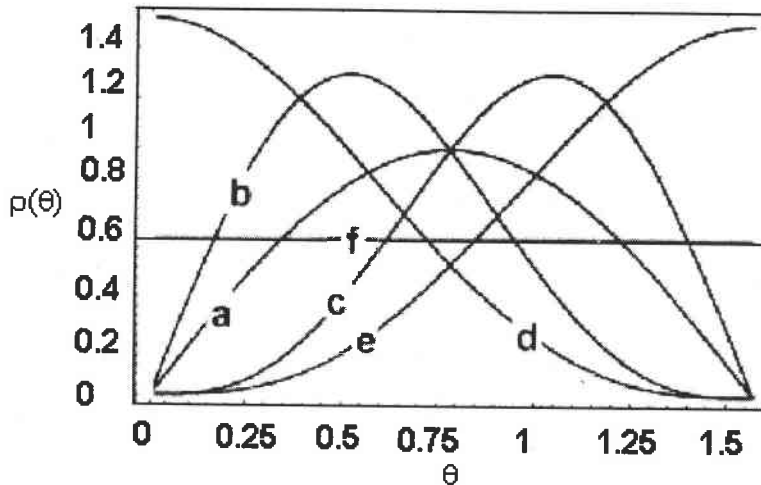


Figure 2-A-3: Représentations de la FOD pour: (a)  $p=q=1$ ; (b)  $p=1, q=2$ ; (c)  $p=2, q=1$ ; (d)  $p=1/2, q=2$ ; (e)  $p=2, q=1/2$ ; (f)  $p=q=1/2$ .

Une variante des hypothèses de base consiste à introduire dans le raisonnement l'angle d'inclinaison de la fibre par rapport à la direction de sollicitation (Fu et Lauke [32]).

### 2-A-7 Les approches phénoménologiques

Les incertitudes qui pèsent sur l'orientation peuvent être partiellement levées en se basant sur des données expérimentales en trois dimensions [33]. Une fibre est maintenant représentée par le vecteur unitaire  $\mathbf{p}$ , les angles  $\phi$  et  $\theta$ :

- $\phi$  définit l'orientation planaire;
- $\theta = \arcsin(a/b)$  l'angle d'inclinaison de la fibre;
- $a$  le petit axe et  $b$  le grand axe de l'ellipse que forme une fibre lorsqu'elle est coupée par un plan.

Les facteurs d'orientation dans les trois plans sont donnés par:

$$F_{or,x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \cos^2 \beta_i * \cos^2 \alpha_i \quad (2-A-55)$$

$$F_{or,y} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \cos^2 \beta_i * \sin^2 \alpha_i \quad (2-A-56)$$

$$F_{or,z} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \sin^2 \beta_i \quad (2-A-57)$$

avec  $0 \leq F_{or,x,y,z} \leq 1$ .

Pour une distribution aléatoire des fibres, ces facteurs ont pour valeur 1/3.

Ces facteurs permettent d'appréhender:

- le nombre de fibres coupées selon leur diamètre dans une aire de référence:

$$P_l = \frac{\sqrt[3]{4 * V_c} * (L_f / D_f)^2}{\pi} \quad (2-A-58)$$

- le nombre de fibres orientées parallèlement au plan de section coupées dans leur longueur:

$$P_q = \frac{N * D_f^2}{L_k^2} = \frac{D_f^2 * L_f}{L_k^3} = \frac{4 * V_c}{\pi} \quad (2-A-59)$$

- le rapport  $P_q/P_l$  qui donne le facteur correctif pour compenser l'inclinaison des fibres:

$$\frac{P_l}{P_q} = \left( \frac{\pi}{4 * V_c} * \frac{L_f}{D_f} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (2-A-60)$$

avec: - xoy: le plan de section

-  $V_c$ : un volume de référence contenant N fibres orientées de longueur  $L_f$ .

Dans son approche de l'orientation, Termonia [34] considère l'angle  $\theta$  que fait chaque fibre dans la matrice avec l'axe y. La probabilité de présence d'une fibre dans cette orientation est:

$$P(\theta) = \tau^3 * (\cos^2 \theta + \tau^3 * \sin^2 \theta)^{-\frac{3}{2}} \quad (2-A-61)$$

avec  $\tau$  paramètre ajustable.

Une équation des angles moyens

$$\langle \cos^2 \theta \rangle = (\tau^3 / (\tau^3 - 1)) * (1 - (\tau^3 - 1)^{-\frac{1}{2}} * \tan^{-1}((\tau^3 - 1)^{\frac{1}{2}})) \quad (2-A-62)$$

due à Kuhn et Grun [35] introduit ce paramètre ajustable  $\tau$  permettant de contrôler la distribution dans le composite.

## 2-A-8 Les facteurs caractérisant l'orientation

L'orientation d'un matériau (obtenue de façon théorique ou expérimentale) est parfaitement définie par la FDO. Cette fonction étant difficile à insérer dans les simulations (mécaniques, thermiques...), des facteurs représentant les principales caractéristiques de la FDO sont utilisés. Une telle opération implique cependant une perte d'informations sur l'orientation des fibres dans le matériau.

Parmi les facteurs les plus souvent rencontrés dans la littérature, on citera:

### 2-A-8-1 Les paramètres issus de l'allure du pic de la FDO

#### (a) Le paramètre $\alpha$ de la fonction escalier

Pour Jayaraman et Kortschot [26], le facteur d'orientation des fibres est tel que:

$$F_{p1} = \int_0^{\pi/2} \rho(\theta) * (\cos^4 \theta - \nu_s * \sin^2 \theta * \cos^2 \theta) d\theta \quad (2-A-63)$$

avec  $\nu_s$  coefficient de Poisson de l'échantillon.

En mécanique, lorsque l'on charge un échantillon dans une direction donnée, une autre expression du facteur d'orientation est obtenue:

$$F_{p2} = \int_0^{\pi/2} \rho(\theta) * \cos \theta * d\theta \int_0^{\pi/2} \rho(\theta) * (\cos^3 \theta - v_s * \sin^2 \theta * \cos \theta) * d\theta \quad (2-A-64)$$

La fonction densité de probabilité  $\rho(\theta)$  étant de la forme escalier (2-A-50), l'évolution de  $F_{p1}$  et  $F_{p2}$  se fera en fonction de l'évolution de son paramètre  $\alpha$  (avec  $v_s$  fixé). Dans le cas aléatoire  $F_{p1}$  est égal à 1/3 ce qui correspond à la valeur donnée par Cox [29].

(b) Le paramètre  $\lambda$  de la fonction exponentielle simple

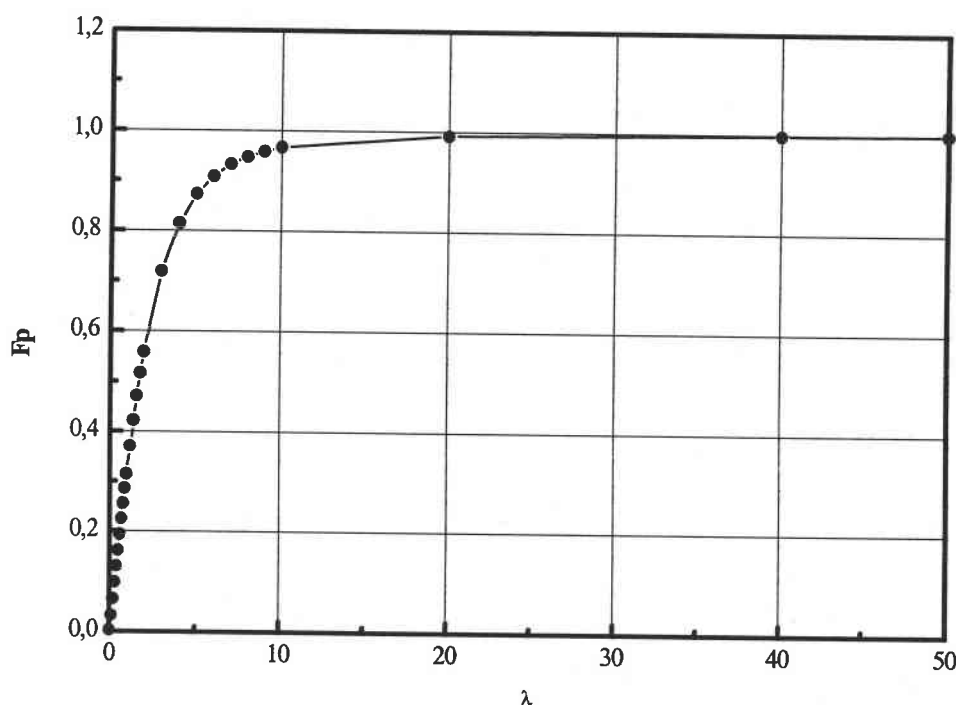


Figure2-A-4: Relation entre le paramètre  $\lambda$  [30] et le facteur d'orientation  $F_p$  de Hermans [24].

Le paramètre  $\lambda$  est introduit par la fonction densité de Kacir [30]. Il est lié à la forme du pic de la fonction de distribution (Figure 2-A-2). Cette dernière est assimilée à une fonction exponentielle à un paramètre et ne s'applique que pour les orientations moyennes.

Pour les distributions limites (parfaitement orientée ou aléatoire) les résultats sont erronés. Cette approximation ne tient pas compte de la courbure de la fonction de distribution à son sommet.

(c) La fonction exponentielle à deux paramètres p et q

L'angle d'orientation le plus probable des fibres est obtenu en annulant la dérivée de la fonction densité de probabilité  $\rho(\theta)$  (2-A-53):

$$\theta = \arctan[(2p - 1) / (2q - 1)]^{1/2}. \quad (2-A-65)$$

Des valeurs particulières de l'angle le plus probable sont rassemblées dans le tableau 2-A-1:

	q		
p	1/2	1	> 1
1/2	Inexistant	$\pi/2$	$\pi/2$
1	0	$\pi/4$	$\pi/4$
> 1	0	$\pi/4$	/

Tableau 2-A-1: Valeurs de l'orientation moyenne des fibres en fonction de p et q.

L'orientation moyenne se calcule à partir de l'équation:

$$\theta_{\text{moy}} = \int_{\theta_{\text{min}}}^{\theta_{\text{max}}} \theta g(\theta) d\theta. \quad (2-A-66)$$

Le facteur d'orientation planaire de Hermans [24] s'écrit quant à lui:

$$f_{\theta} = 2 \int_{\theta_{\text{min}}}^{\theta_{\text{max}}} g(\theta) \cos^2(\theta) d\theta - 1. \quad (2-A-67)$$

## 2-A-8-2 Remarques sur les facteurs d'orientation de Hermans [24] et exemples d'application

### (a) Relation avec le tenseur d'orientation d'ordre deux

L'orientation des fibres peut être décrite à l'aide de moyennes trigonométriques simples. Dans le cas des propriétés mécaniques d'un composite à fibres courtes, Mc Cullough [36] montre qu'elles dépendent d'un certain nombre de moyennes trigonométriques.

Dans le cas planaire, (plan xy), ces moyennes sont:

$$\langle \cos^m \phi \rangle = \int_0^{2\pi} \psi_\phi(\phi) * \cos^m \phi d\phi \quad (2-A-68)$$

avec  $m=2, 4$ .

Les facteurs de Hermans planaires utilisent ces moyennes pour donner des informations sur l'orientation du système:

$$F_p = 2 \langle \cos^2 \phi \rangle - 1 \quad (2-A-69)$$

$$g_p = (8 \langle \cos^4 \phi \rangle - 3) / 5 \quad (2-A-70)$$

Pour le cas tridimensionnel, on a:

$$F_a = (3 \langle \cos 2\theta \rangle - 1) / 2 \quad (2-A-71)$$

$$G_a = (5 \langle \cos 4\theta \rangle - 1) / 4 \quad (2-A-72)$$

Les moyennes intervenant dans les expressions précédentes sont également les moments de la distribution en orientation. Dans le cas tridimensionnel, l'équation planaire (2-A-68) doit être remplacée par

$$\langle \cos^m \theta \rangle = \int_0^{2\pi} \psi_\theta(\theta) * \cos^m \theta * \sin \theta d\theta \quad (2-A-73)$$

(m toujours égal à 2 ou 4).

Dans le cas d'un alignement parfait des fibres avec l'axe de référence (axe x):  $F_p = g_p = 1$ .

Pour une distribution aléatoire des fibres  $F_p = g_p = 0$ .

Il est à noter que différentes fonctions de distribution peuvent donner une même valeur du facteur d'orientation, ce qui montre les limites de ces facteurs.

Ranganathan et Advani [12] ont généralisé les facteurs de Hermans en introduisant les moments de la fonction  $\psi$  (paire) et en intégrant sur l'espace des orientations.

Ils définissent la fonction de pondération  $f$  par:

$$f = 1 - (\alpha * \det|\bar{a}_{ij}|)^m \quad (2-A-74)$$

avec dans la plupart des cas  $\alpha=4$  en deux dimensions et 27 en trois dimensions.

La constante  $\alpha$  est toujours choisie de sorte que  $f$  soit normalisée entre 0 et 1 (aléatoire et aligné). Si  $m=1$  (dans 2-A-74) on trouve une autre expression du facteur de Hermans (équation 2-A-69). La sensibilité de  $f$  à l'orientation est faible pour de forts alignements si  $m=1$ . On peut améliorer cette sensibilité en diminuant  $m$ .

Une autre expression tridimensionnelle de  $f$  [3] est:

$$f = A * \bar{a}_{ij} * \bar{a}_{ji} - B \quad (2-A-75)$$

avec : - dans le cas bidimensionnel  $A=2, B=1$ ;

- dans l'espace  $A=3/2$  et  $B=1/2$ .

Cette forme de  $f$  est très fiable en deux dimensions mais beaucoup moins efficace en trois dimensions.

Dans le cas de l'orientation planaire (2-A-74) et (2-A-75) sont identiques (on peut le montrer en utilisant la condition de normalisation  $a_{ij}=1$ ).

#### (b) Application du facteur $F_p$ due à Templeton [37].

L'orientation des fibres courtes dans un composite va déterminer la microstructure du composite et dicter les propriétés mécaniques. Le composite sera d'autant plus résistant que les fibres seront bien orientées selon la direction de sollicitation mécanique, d'où l'importance d'une bonne évaluation de l'orientation dans le matériau.

Templeton [37] développe le calcul de  $F_p$  et propose une application expérimentale. Il obtient l'expression:

$$F_p = 2 * \frac{\sum_i (N(\phi_i) * \cos^2 \phi_i)}{\sum_i N(\phi_i)} - 1 \quad (2-A-76)$$

$N(\phi_i)$ : nombre de fibres mesurées selon un angle  $\phi_i$ ;

$\phi_i$ : angle que font les fibres avec l'axe de référence.

On remarque que cette expression est une autre écriture du facteur d'orientation planaire de Hermans (2-A-69).



## **2-B DETERMINATION DES PARAMETRES D'ORIENTATION DE FIBRES COURTES DANS UNE MATRICE**

De la méthode la plus fastidieuse consistant en une exploitation manuelle de comptage à partir d'une photographie jusqu'aux systèmes automatisés, ce paragraphe recense différentes techniques de mesure et précise la nature des paramètres caractérisant l'orientation des fibres dans un matériau. Dans la littérature, il n'existe que peu de données concernant les caractéristiques des statistiques exploitées. Le traitement statistique choisi dans ce travail sera détaillé ultérieurement (2-C).

### **2-B-1 Les méthodes manuelles**

La procédure la plus simple consiste à réaliser dans un premier temps une image de l'échantillon à travers un microscope [38]. Sur la photographie agrandie, les angles des fibres avec la direction de référence sont mesurés manuellement avec règle et rapporteur. Cette analyse conduit à un facteur d'orientation planaire.

Afin de conserver la notion de statistique, 500 fibres sont repérées par surface. Bien que fastidieuse, cette méthode reste encore employée de nos jours [40], [41] et [42].

### **2-B-2 Les méthodes physiques**

Avant de les détailler, citons les travaux essentiels:

\* Fakirov et Fakirova [41] obtiennent l'orientation des fibres en reliant leur section vraie à la section observée dans le plan perpendiculaire à la direction d'écoulement. Cela implique que les fibres soient dans un même plan.

\* Funabashi et Kitano [42] abordent l'orientation par le biais de la conductivité électrique du composite suite aux travaux de Pike et Seager [43]. Pour ces derniers la conductivité est assurée par les fibres et sera donc fonction de leur orientation. Funabashi et Kitano élaborent des échantillons composés de fibres de carbone de différentes longueurs, de différents diamètres de façon à créer des facteurs d'orientation eux aussi différents.

L'orientation, obtenue par centrifugation, est caractérisée par des mesures de densité, de résistivité volumique et d'observations au microscope électronique à balayage. La distribution en orientation des fibres est déduite de l'ensemble des observations.

La distribution en densité et la résistivité volumique sont mesurées dans la direction de la force centrifuge. La distribution de la fraction volumique des fibres dans le plan perpendiculaire à la direction de la force centrifuge est aléatoire.

Deux méthodes de mesure de la résistivité volumique sont employées:

(a) Méthode des électrodes plates parallèles: (Figure 2-B-1)

Les deux surfaces de l'échantillon sont recouvertes d'un film d'argent dans le but de réduire l'effet des résistances de contact. La résistivité volumique de l'échantillon est déterminée par la mesure d'un courant électrique et de la tension à travers l'épaisseur.

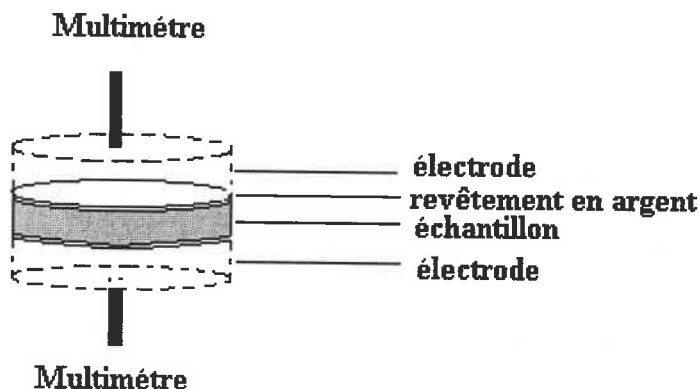


Figure 2-B-1: Méthode des électrodes plates.

(b) La méthode des quatre points [44]: (Figure 2-B-2)

La résistivité à la surface des échantillons est mesurée par un multimètre équipé de quatre sondes, parallèlement à la surface. L'utilisation d'un film d'argent n'est pas nécessaire (pas d'effet de résistance de contact).

Un facteur géométrique de correction lié à la géométrie de l'échantillon est déterminé à l'aide d'un logiciel, puis les résistivités mesurées sur l'échantillon sont moyennées.

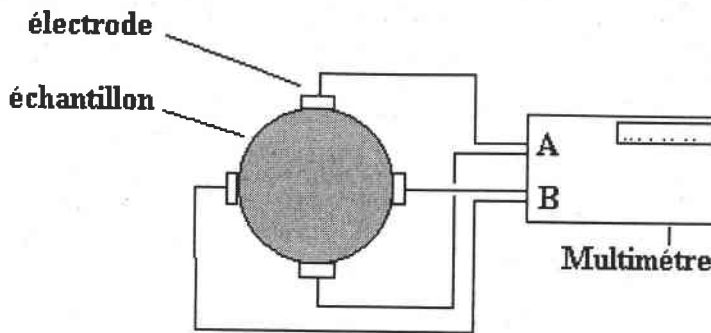


Figure 2-B-2: Méthode des quatre points

(les points A et B sont reliés aux électrodes associées 2 à 2).

Les mesures effectuées mettent en évidence l'influence des fibres sur la conductivité:

- à épaisseur et taux de fibres constants, la résistivité volumique décroît lorsque la longueur des fibres augmente;
- l'effet de la longueur ou du facteur de forme des fibres est plus grand que celui de la fraction volumique de fibres.

La mesure de la résistivité par la méthode des quatre points présente un caractère moins aléatoire que celle des électrodes planes et donne des valeurs légèrement inférieures.

Cette amélioration de la précision permet aux auteurs [42] de déduire l'orientation générale des fibres.

\* En se basant sur la théorie de la diffraction, Mc Gee et Mc Cullough [45] ont développé une technique personnelle pour estimer le facteur d'orientation planaire  $F_p$ .

Le négatif de la photographie du composite à fibres courtes est utilisé comme masque de diffraction pour un faisceau laser. Le spectre produit par le masque de diffraction dépend de l'orientation et de la largeur des ouvertures, c'est à dire des images des fibres sur le négatif dans le cas du composite. Des valeurs calibrées de  $F_p$  sont obtenues en utilisant des images simulées du matériau pour lesquelles la valeur du facteur d'orientation est connue.

La valeur de  $F_p$  pour un échantillon est obtenue par comparaison avec les spectres de référence (Figure 2-B-3).

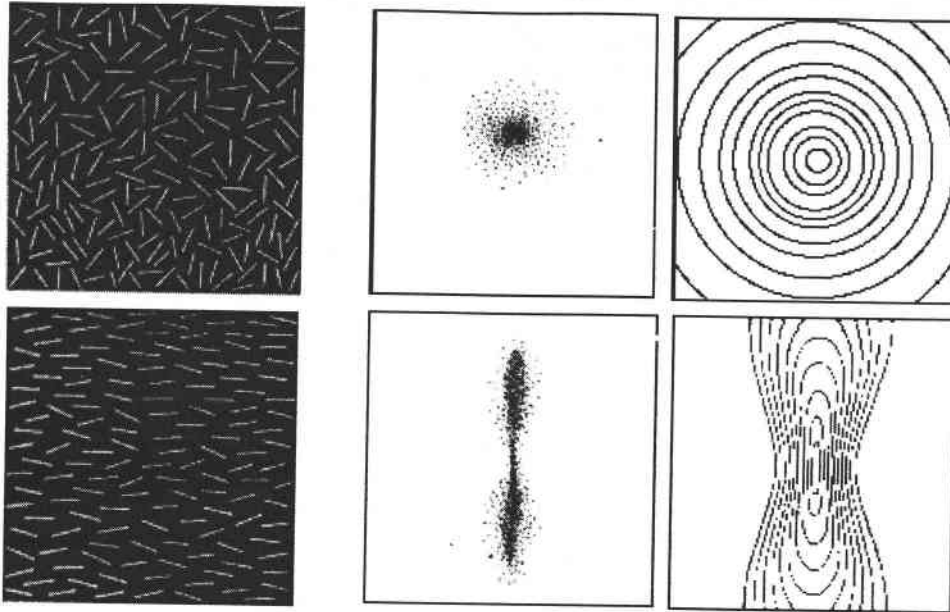


Figure 2-B-3: Détermination de l'orientation dans un matériau par diffraction [45].

Certains inconvénients sont inhérents à cette méthode:

- (i) la nécessité de comparaisons subjectives;
- (ii) le temps nécessaire à la préparation des négatifs;
- (iii) le fait que seule une mesure de  $F_p$  soit obtenue et non la FDO.

Cette technique d'analyse a été améliorée par Lovrich et Tucker [46] justement afin de déterminer la FDO. Les figures de diffraction sont les transformées de Fourier des images. En prenant la transformée de Fourier discrète d'une image digitalisée et en traçant l'intensité azimutale à coordonnée radiale constante, on doit être capable de retrouver la FDO. Cette procédure a été vérifiée par des simulations numériques. L'importance des calculs numériques requis ne rend pas cette technique très attractive.

### 2-B-3 L'analyse d'images

Les méthodes d'analyse d'images ont connu diverses évolutions au gré des progrès techniques et de leur accessibilité financière. Les premières méthodes consistant en un traitement informatique de la photographie d'un échantillon permettaient de caractériser une orientation. Grâce à l'amélioration des performances des ordinateurs, les méthodes planaires

ont été affinées et aujourd'hui, des procédures calculant une fonction de distribution des fibres ainsi qu'un facteur d'orientation tridimensionnel sont en cours de développement.

### 2-B-3-1 L'analyse en deux dimensions

Les méthodes d'analyse d'image appliquées aux composites ont été initiées par Folgar et Tucker [2] en milieu faiblement concentré (moins de 10% de fibres en volume).

Pour réaliser une étude statistique, chaque analyse est effectuée 18 fois. D'un point de vue pratique, il est important d'évacuer toutes les bulles d'air de la solution car elles peuvent modifier le mouvement des fibres et les interactions fibre-fibre.

Les auteurs utilisent des photographies en noir et blanc. Les photos obtenues sont ensuite digitalisées et l'orientation d'une centaine de fibres sur chaque photo mesurée. Globalement 1800 fibres sont répertoriées. L'angle entre l'axe longitudinal de la fibre et la direction de référence est mesuré sur des fibres prises aléatoirement à différents endroits. Un logiciel d'exploitation calcule l'angle d'orientation et la position du centre de gravité des fibres choisies. Une image recalculée de l'échantillon en est déduite. Cette image, comparée à l'originale, révèle les éventuelles erreurs dans la digitalisation ou dans le transfert des données.

\* Templeton [37] utilise des négatifs en provenance d'un microscope électronique à balayage. Les images sont transmises du microscope à l'analyseur d'images par une caméra CCD. Cet analyseur détermine les angles et calcule les facteurs d'orientation. La mesure proprement dite se faisant à l'aide d'un crayon optique.

\* Gadala - Maria et Parsi [47] développent une technique nécessitant une caméra CCD avec zoom, une carte d'acquisition, un PC et une imprimante. La valeur numérique de chaque pixel (mesure du niveau de gris de l'image) s'étale de 0 (= noir) à 255 (= blanc).

Les différentes étapes de l'analyse sont:

- (i) l'identification des fibres;
- (ii) l'identification de leurs extrémités;
- (iii) le calcul de l'orientation du gradient des vecteurs;

(iii) l'identification des sources d'erreur.

(i) Identification des fibres

La séparation des fibres du reste de l'image est obtenue en seuillant l'image (on lui fixe une valeur du seuil de niveau de gris). Les pixels en dessous du seuil se voient assigner la valeur 0 (noir) et ceux au dessus la valeur 255 (blanc). La valeur de seuillage est déterminée par une méthode d'essais - erreurs. Elle dépend des conditions d'éclairage et du niveau de gris des fibres par rapport à celui de la matrice.

Le choix de la valeur du seuillage est une opération délicate. Il faut éviter d'inclure dans la numérisation des informations qui ne concernent pas les fibres et ne pas exclure des fibres qui se trouvent dans le plan focal de la lentille.

(ii) Identification des extrémités des fibres

Après localisation des fibres, la technique de Frei et Chen [48] est utilisée pour distinguer leurs contours sur l'image binaire. Pour identifier les pixels relatifs aux contours des fibres, le niveau de gris  $A(i,j)$  de chaque pixel sur une fibre est réévalué comme une fonction des pixels adjacents. Cette opération consiste à placer les opérateurs de Frei et Chen (2-2-1) sur chaque sous région de  $3 \times 3 = 9$  pixels de l'image de telle sorte que l'élément central de chaque masque soit placé sur le pixel en  $(i,j)$ .

$$\begin{aligned} \bar{w}_1 &= \begin{vmatrix} 1 & \sqrt{2} & 1 \\ 0 & 0 & 0 \\ -1 & -\sqrt{2} & -1 \end{vmatrix} & \bar{w}_2 &= \begin{vmatrix} 1 & 0 & -1 \\ \sqrt{2} & 0 & -\sqrt{2} \\ 1 & 0 & -1 \end{vmatrix} \\ \bar{w}_3 &= \begin{vmatrix} 0 & -1 & \sqrt{2} \\ 1 & 0 & -1 \\ -\sqrt{2} & 1 & 0 \end{vmatrix} & \bar{w}_4 &= \begin{vmatrix} \sqrt{2} & -1 & 0 \\ -1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & -\sqrt{2} \end{vmatrix} \end{aligned} \quad (2-2-1)$$

Le niveau de gris de chaque pixel est alors multiplié par l'élément de l'opérateur correspondant. Les neuf produits sont additionnés et stockés ( $WA(i)$ ,  $i=1, 2, 3, 4$ ).

Le niveau de gris des pixels de contour  $EA(i,j)$  est donné par:

$$EA(i,j) = (WA_1^2 + WA_2^2 + WA_3^2 + WA_4^2)^{\frac{1}{2}} \quad (2-2-2)$$

Dans les fibres et dans la matrice (sans gradient de niveaux de gris), les  $WA(i)$  sont nuls, ce qui n'est pas le cas s'il existe un gradient. Ces calculs sont effectués pour tous les pixels sauf

ceux des bords de l'image binaire. Finalement les niveaux de gris des contours sont échelonnés entre 0 et 255. Les contours des images sont à nouveau seuillés en utilisant une valeur fixée.

Les pixels de contour, après échelonnage, auront l'une des cinq valeurs suivantes: 0, 128, 181, 221 et 512. Un seuillage adapté inclue les contours des fibres.

Remarque: Les contours auraient pu être déterminés en appliquant les opérateurs de Frei et Chen [48] sur l'image originale. L'utilisation de l'image binaire a néanmoins l'avantage d'utiliser une valeur de seuillage des pixels de contour identique pour toutes les images (ce qui n'est pas le cas si on utilise l'image initiale).

(iii) Calcul de l'orientation du vecteur gradient de gris (VGG):

L'orientation des vecteurs associés au dégradé est calculée pour chaque pixel en tenant compte du contour de la fibre. Pour cela, on applique le masque vertical [3\*3] de Sobel (2-2-3) [49] sur chaque zone de 3\*3 pixels de l'image de sorte que le masque y soit centré.

Dans un premier temps on identifie les pixels correspondant à l'extrémité d'une fibre. Le niveau de gris de chaque pixel de l'image originale est multiplié par l'opérateur vertical de Sobel. Les neuf produits obtenus sont additionnés et stockés dans DELX. La même opération est ensuite réalisée avec le masque horizontal et le résultat est stocké dans DELY.

$$\text{Opérateur vertical} = \begin{vmatrix} -1 & 0 & 1 \\ -2 & 0 & 2 \\ -1 & 0 & 1 \end{vmatrix}; \text{Opérateur horizontal} = \begin{vmatrix} 1 & 2 & 1 \\ 0 & 0 & 0 \\ -1 & -2 & -1 \end{vmatrix} \quad (2-2-3)$$

L'angle d'orientation  $\phi$  du vecteur pour un pixel sur le contour d'une fibre est donné par:

$$\phi = \arctan\left(\frac{6}{5} * (\text{DELY} / \text{DELX})\right) \quad (2-2-4)$$

6/5 correspond au rapport des dimensions horizontales et verticales des pixels du système utilisé. Dans le cas de pixels carré ce rapport est de 1.

L'angle d'orientation  $\phi$  du vecteur gradient de gris est calculé pour tous les pixels de contour de la fibre.

La valeur de la FDO,  $\psi(\phi)$ , est calculée en divisant le nombre de pixels du contour ayant une orientation  $\phi$  du vecteur gradient, par le nombre total de pixels de contour de la fibre (Figure 2-B-4).

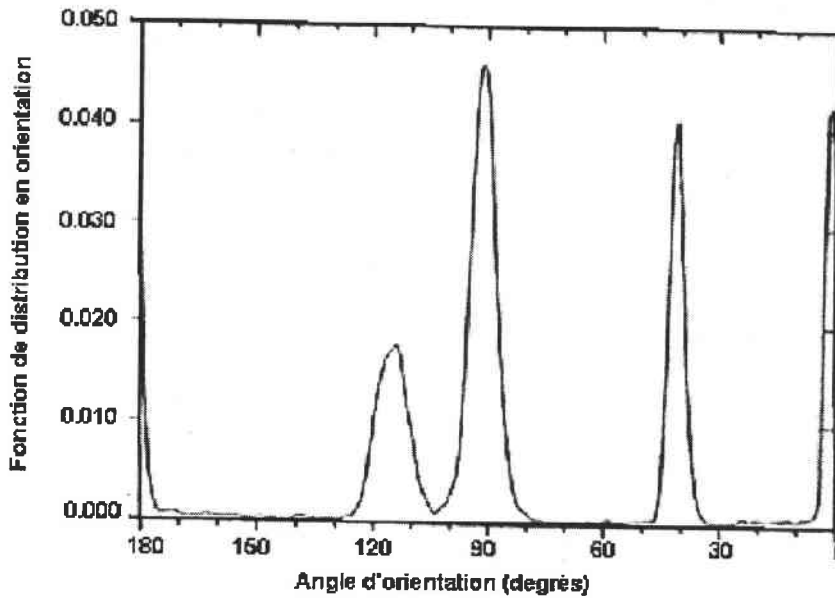


Figure 2-B-4: FDO type obtenue par Gadala Maria et Parsi[47].

#### (iii) Identification des sources d'erreurs

- L'effet de fin de fibre décroît quand le facteur de forme des fibres augmente.
- Les fibres n'ayant que quelques pixels de large ont un niveau de gris plus faible et apparaissent plus finement lorsqu'elles sont horizontales que verticales. Quand elles sont horizontales, elles sont donc sous représentées dans la FDO.
- Un éclairage non uniforme et une surface des fibres rugueuse peuvent introduire des erreurs dans la FDO.

#### 2-B-3-2 L'analyse en trois dimensions.

Le problème de l'analyse spatiale est lié à la visualisation des fibres. Pour des concentrations élevées, le matériau devient opaque et il n'est plus possible de différencier les fibres. De plus, si les fibres ne sont pas calibrées en longueur, la détermination de leur angle azimutal sera difficile.



Mesurer l'orientation de fibres, que ce soit par analyse d'image ou par diffraction, impose donc d'obtenir une image de qualité des fibres dans la matrice.

Pour ce faire:

- les images d'échantillons de faible épaisseur sont faites en transmission à l'aide de micro - radiographies ou d'un microscope optique en transmission (surtout dans le cas d'une matrice transparente et de fibres colorées);
- des surfaces polies sont photographiées à l'aide d'un microscope travaillant en réflexion.

La méthode retenue doit l'être en fonction du matériau à étudier. Par exemple, les fibres renforçant les thermoplastiques sont semi-cristallines et les matrices non transparentes, la microscopie en transmission est donc sans intérêt.

L'utilisation de méthodes à haute résolution telles que celles décrites par Horn, Waltinger [50] ou Heckmann, Ramsteiner [51] permet de faire de l'imagerie sur les fibres de verre. Ces méthodes ne donnent pas accès à l'orientation spatiale, d'où impossibilité d'une représentation stéréographique.

Pour avoir une image 3D, un des principaux problèmes est l'épaisseur finie des échantillons. Des fibres, à différentes profondeurs, peuvent se superposer ou se croiser. Il en résulte des difficultés importantes de prise en compte que l'analyse soit automatique ou manuelle. De plus, chaque fibre doit être clairement séparée et identifiée [52]. Ceci est impossible en microscopie en transmission ou en micro - radiographie.

Cette approche tridimensionnelle faisant actuellement l'objet de nombreux développements, seul un aperçu de trois méthodes remarquables est donné.

\* La détermination de l'orientation dans l'espace est relativement facile lorsque les fibres ont toutes la même longueur. O'Connell et Duckett [53] mesurent les variations spatiales de la distribution en orientation de fibres dans le cas du moulage par injection de plaques en résine époxy avec fibres de carbone.

(a) Caractéristiques de cette méthode:

Elle est basée sur des mesures d'ellipticité et d'orientation des fibres rencontrées sur des surfaces polies lors d'une observation au microscope en réflexion.

La technique utilisée est celle du polissage métallographique [54]. Une petite partie du moulage est délicatement coupée dans la plaque et enrobée de résine. Elle est progressivement polie jusqu'au polissage final avec du papier de 0.5 $\mu$ m.

Au moyen d'un microscope en réflexion on peut voir que les fibres cylindriques coupent la surface polie selon des sections elliptiques. Le degré d'ellipticité  $e$  sera une mesure de l'angle que les fibres font avec la surface polie ( $\theta_z$ ):

$$\theta_z = \cos^{-1}(1 - e). \quad (2-2-4)$$

L'axe  $z$  se réfère à l'axe perpendiculaire au plan de section  $P$  et  $\theta_z$  est l'angle formé par l'axe de la fibre avec cet axe. L'orientation de la fibre est complètement décrite en mesurant l'angle  $\phi_z$  formé par l'axe principal de l'ellipse avec l'axe de référence dans le plan de section. Connaissant  $\theta_z$  et  $\phi_z$ , des équations de transformation permettent de calculer  $\theta_y$  et  $\theta_x$  (figure 2-B-5).

La distribution des fibres est caractérisée en calculant les orientations moyennes  $\langle \cos^2 \theta_x \rangle$ ,  $\langle \cos^2 \theta_y \rangle$  et  $\langle \cos^2 \theta_z \rangle$ .

Des négatifs à fort contraste de la section polie sont produits par une technique photo-micrographique standard (grossissement  $\times 30$ ). Un seul négatif peut contenir plus de 10 000 images de sorte que le dépouillement est impossible.

A l'aide du système d'analyse nommé COSMOS [56], les coordonnées spatiales, la taille, l'orientation de l'axe principal et l'ellipticité de chaque fibre sont obtenues. COSMOS est une machine totalement automatique utilisée en astronomie permettant de scanner des plans photographiques. Les photos des composites sont similaires à celles du ciel, avec des aires très sombres et des fibres lumineuses.

Le négatif est scanné avec un spot de 0,01 à 0,02 mm. La quantité de lumière transmise est convertie en niveaux de gris (256 niveaux) et un seuillage est effectué de façon à éliminer tout point erroné. Les résultats sont stockés pour les analyses ultérieures.

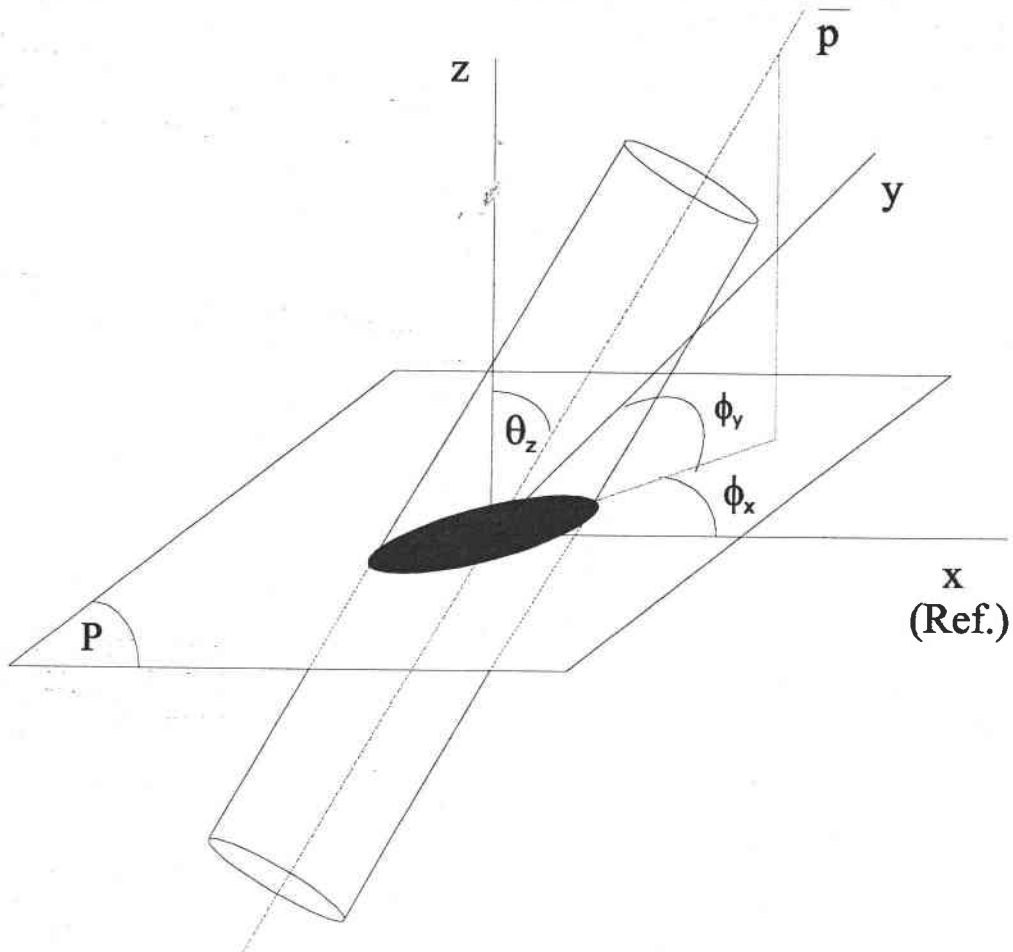


Figure 2-B-5: Mesure de l'orientation d'une fibre calibrée en trois dimensions.

(b) Les sources d'erreur:

- ce système d'analyse d'images ne peut distinguer les fibres qui se touchent et il produira donc une ellipse autour de l'image composée de plusieurs fibres;
- les poussières et saletés accrochées au négatif. Lorsque l'on examine la distribution du petit axe de l'ellipse on observe un pic pour un diamètre différent de celui de la fibre. Il est dû aux artefacts de manipulation (traces de doigts), aux poussières et saletés à la surface de la micrographie;
- circularité des fibres. La méthode suppose que les fibres ont une section circulaire. Une analyse au MEB montre qu'en réalité les fibres ont une section elliptique ( $e=0,011$ ).

- taille finie du faisceau pour scanner;
- cohérence interne. L'orientation trouvée dans un plan particulier doit représenter l'orientation vraie pour valider la méthode. Cela a été prouvé en prenant des photos dans trois plans perpendiculaires deux à deux. Les résultats montrent que les valeurs des fonctions d'orientation mesurées dans les trois plans sont en accord entre elles;
- les dommages dus au polissage combinés à la digitalisation réduisent le nombre apparent de fibres de 15%;
- les erreurs induites par le polissage ou la digitalisation font que les fibres apparaissent elliptiques et donc avec de fausses valeurs de  $\theta_z$ . Pour réduire ces erreurs, on peut choisir un autre plan de coupe de sorte que les sections des fibres soient mieux définies.

\* Fischer et Eyerer [33] se sont penchés sur le cas de fibres courtes de verre dans des thermoplastiques.

Les échantillons polis sont observés par microscopie en réflexion. Les images sont capturées par une caméra CCD reliée à un ordinateur.

L'image vidéo est digitalisée et stockée dans la mémoire du système Zeiss/Kontron IPS avec une résolution de 512\*512 pixels. L'application de corrections et d'opérateurs de filtrage donne une image en niveaux de gris qui est différenciée dans le but d'obtenir une image binaire. Cette dernière ne comprendra que des éléments identifiés comme sections de fibres (ellipses). Une correction manuelle de l'image sera parfois nécessaire.

La méthode de mesure de l'orientation spatiale des fibres utilise aussi le fait que les sections de fibres, de longueur finie, ont une section elliptique. Le rapport des deux axes principaux de l'ellipse dépend de l'angle d'inclinaison du plan de coupe. L'orientation de la fibre dans le plan de coupe est l'orientation de l'axe principal de l'ellipse.

Un certain nombre de particularités des fibres courtes nécessitent des algorithmes spéciaux ainsi que des corrections des valeurs obtenues:

- les fibres de verre n'ont pas de longueur homogène. Comme la longueur des fibres ne peut être mesurée sur une section polie, on travaille avec une longueur de fibre moyenne.

- l'accès à l'orientation dans l'espace des fibres s'obtient en utilisant un système de coordonnées polaires choisi en relation avec les axes de l'échantillon.

On obtient ainsi deux graphes, l'un pour l'orientation, l'autre pour l'inclinaison, ce qui donne accès à l'orientation en trois dimensions (figure 2-B-6).

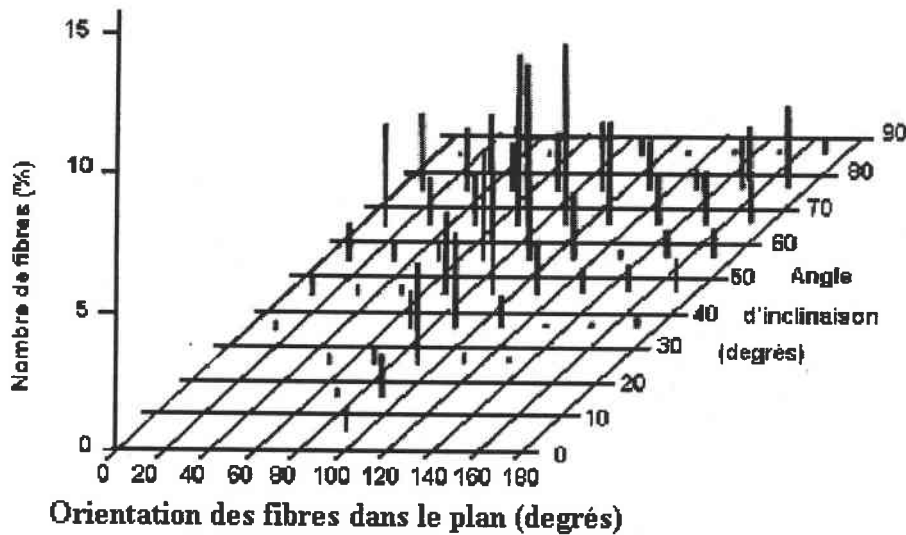


Figure 2-B-6: Mesure de l'orientation et de l'inclinaison des fibres.

\* Une méthode particulière au niveau de la visualisation des fibres est développée par Mc Grath et Wille [15]. Après avoir détaillé les points essentiels de ce travail, une comparaison avec la méthode des ellipses précédentes sera effectuée.

(i) Principe de la méthode.

Les auteurs visualisent des traceurs. Des fibres opaques (carbone) sont insérées en petite quantité (0,1 à 0,3 % en poids) parmi des fibres transparentes (verre) (jusqu'à 30 % en poids) dans une matrice transparente de PMMA. La détermination de l'orientation des fibres de carbone (traceurs) donnera des indications sur l'orientation des fibres de verre. Cette méthode a l'avantage d'être non destructive, indépendante de l'opérateur, économique et rapide.

Une série d'images en 2D est obtenue par balayage séquentiel le long de l'axe de l'échantillon à l'aide d'un microscope. Des images 3D sont reconstruites à partir de ces données et chaque

orientation est alors déterminée. Le système d'imagerie maximise la résolution ainsi que la pénétration en profondeur. Il minimise l'influence de l'opérateur, le positionnement de l'échantillon et l'acquisition d'image étant automatiques.

L'opérateur n'intervient que sur l'intensité de la lumière du microscope et le contrôle de la caméra vidéo.

Les fibres étudiées par ces auteurs ont une longueur moyenne de  $900\mu\text{m}$  et une répartition monodisperse. De par le procédé d'injection, la longueur des fibres observées est d'environ  $300\mu\text{m}$ . Pour scanner et digitaliser une image il faut de 5 à 10 secondes, c'est à dire de 5 à 10 mn pour  $1\text{mm}^3$ . Une étude typique de 10 000 images nécessitera 18 heures. Finalement ces images servent à reconstruire une image en 3D.

L'algorithme d'affinage en 3D comprend:

- la détermination de la position des extrémités des fibres et des intersections qui sont utilisées pour quantifier la longueur des fibres ainsi que l'orientation;
- un algorithme de type squelette [2-C] qui réduit les structures en une chaîne unique de pixels le long de l'axe principal. Cet algorithme ne dérange pas la connectivité de l'image et ne réduit pas la longueur de la chaîne de pixels. Il efface les pixels de manière uniforme de telle sorte que les pixels restants se trouvent toujours selon l'axe médian de la fibre (axe principal).

Les extrémités des fibres sont identifiées sur l'image résultante comme les pixels ayant un seul voisin tandis que ceux ayant plus de deux voisins sont des intersections de fibres.

#### (ii) Détermination de l'orientation et de la longueur des fibres.

Une ambiguïté existe lorsque les fibres semblent se superposer. L'axe de résolution optique ne permet pas d'isoler les fibres lorsqu'un petit nombre de fibres longues se croisent ou quand un grand nombre de fibres courtes sont contiguës. Le tenseur d'orientation et l'histogramme en trois dimensions ne sont pas perturbés par cette ambiguïté.

Pour définir une fibre, les pixels sont pondérés par leur niveau de gris et le tenseur du moment d'inertie est calculé pour chaque fibre. La direction de chaque fibre est définie comme le

vecteur propre associé au moment d'inertie principal minimum. La longueur totale des fibres dans une direction donnée est déterminée à partir de la taille et du nombre de pixels.

(iii) La fonction de distribution en orientation des fibres (FDO). (Figure 2-B-7)

La FDO peut être déterminée dans un volume défini en divisant l'espace des orientations en incréments d'angles solides discrets et en sommant la longueur totale des fibres dans chaque direction (centrée sur l'incrément d'angle solide). De cette façon, un histogramme en trois dimensions représentant la FDO peut être créé. Une sphère unité correspondra à l'absence de fibre. L'amplitude et la direction des pics sur cette sphère correspondent à la quantité totale de fibres détectées et à leurs orientations.

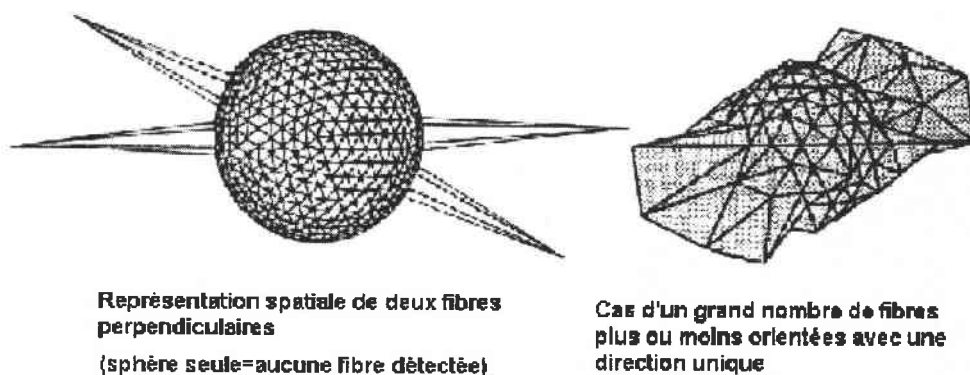


Figure 2-B-7: Représentation en trois dimensions de la FDO.

(iii) Le tenseur d'orientation des fibres  $a_{ij}$ .

L'état d'orientation des fibres peut être représenté sous forme de tenseur. Un tenseur d'orientation moyen est défini en calculant les composantes  $a_{ij}$  de chaque fibre. L'orientation et la longueur des axes principaux de l'ellipsoïde (représentant une fibre) sont déterminées à partir des valeurs et des vecteurs propres du tenseur d'orientation pour chaque volume considéré. La projection des représentations ellipsoïdales des FDO sur les plans x-y, x-z et y-z permet une visualisation rapide des états d'orientation.

Le tenseur d'orientation calculé pour une distribution uniforme des fibres est très proche du résultat idéal. C'est un tenseur diagonal avec  $a_{11}=a_{22}=a_{33}=0,333$ . Cela indique une détermination très précise de l'angle d'orientation.

Pour les échantillons réels, il faut tenir compte des erreurs provenant du système optique. L'orientation est déterminée avec une précision de 2 degrés et la longueur avec une incertitude

de 3%. Parce que la résolution selon l'axe z est relativement faible comparativement à celle dans le plan x-y, la précision de la détermination expérimentale des angles d'inclinaison doit être examinée de manière critique.

Une comparaison du sectionnement optique et de la méthode des ellipses de surface indique une très bonne corrélation entre les deux méthodes quand les composantes du tenseur représentatif sont déterminées à la même position sur l'échantillon. En ce qui concerne la reproductibilité, les sources de divergence sont:

- le petit nombre de fibres traceuses;
- la variabilité en fonction de l'opérateur;
- les conditions de moulage par injection qui ne sont pas reproductibles.

La première cause d'erreur est limitée en digitalisant une plus grande aire. Les deux dernières doivent être négligées car difficilement quantifiables.

Les deux principales limitations de cette méthode sont d'une part la combinaison fibre - matrice dont les indices de réfraction doivent être compatibles et d'autre part la forte densité des fibres traceuses qui entraîne la diminution de la profondeur de pénétration du sectionnement optique.



## 2-C LA METHODE D'ANALYSE RETENUE

Une méthode d'analyse d'images a été choisie pour analyser l'ensemble des échantillons. Les méthodes manuelles ayant été écartées pour des raisons évidentes, le choix restant était entre les méthodes de diffraction et les méthodes d'imagerie optique. Si une exploitation tridimensionnelle des échantillons est nécessaire, des méthodes de diffraction sont recherchées. Elles sont plus performantes, elles sont aussi plus coûteuses et plus lourdes à mettre en place que l'imagerie.

L'obtention d'une analyse spatiale de l'orientation des fibres simple, rapide, peu coûteuse, nécessite l'utilisation de fibres calibrées. Ceci n'est pas le cas dans le présent travail (voir choix des matériaux dans le chapitre 1).

En intégrant l'ensemble des contraintes propres à notre étude, l'analyse d'images optiques a été choisie pour déterminer l'orientation planaire des échantillons. Les performances actuelles des micro - ordinateurs permettent d'effectuer des traitements d'images qui relevaient, il n'y a pas si longtemps, de la station de travail. L'acquisition des images ne nécessite quant à elle qu'un microscope classique de bonne qualité.

### 2-C-1 Les matériels utilisés

#### 2-C-1-1 Les échantillons.

Deux formes d'échantillons ont été analysées:

- (i) échantillons carrés de 20\*20mm;
- (ii) échantillons rectangulaires de 20\*50mm.

La capture de l'image par le logiciel à travers la caméra CCD et le microscope se fait à un grossissement x50. Compte tenu de la plage de travail du logiciel, à ce grossissement une image traitée représente une surface d'échantillon d'environ 1.5 mm<sup>2</sup>. Une analyse de la totalité de la surface de l'échantillon rectangulaire nécessiterait donc plus de 400 images. Le protocole expérimental retenu limite le nombre d'images à

- (i) 5 pour un échantillon carré;

(ii) 15 pour un échantillon rectangulaire (figure 2-C-1).

La localisation des zones de capture est faite en fonction de l'observation des orientations significatives des fibres par rapport aux parois et aux conditions d'injection. La condition principale est que l'orientation globale de l'échantillon reste fidèle à la réalité.

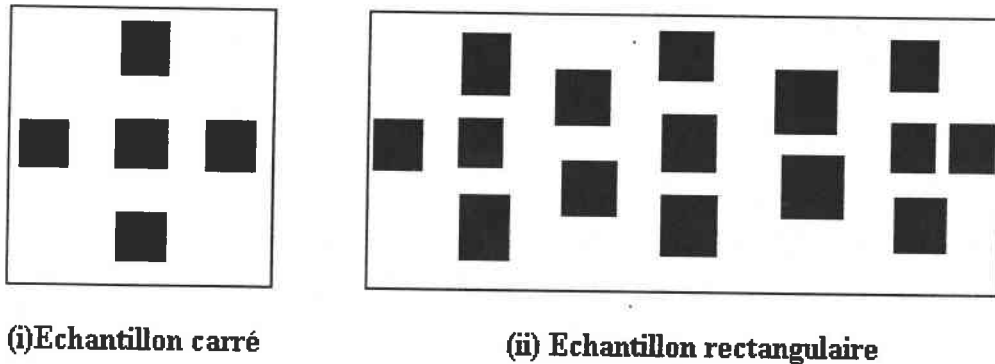


Figure 2-C-1: Zones de capture d'image dans le cas d'un échantillon (i) carré et (ii) rectangulaire.

#### 2-C-1-2 L'appareillage.

L'acquisition de l'image est effectuée à l'aide d'une caméra CCD 2/3 pouce 756\*581 reliée à un microscope Zeiss Axiotech 100HD pour lumière transmise et réfléchi. La caméra est connectée à un PC équipé d'une carte d'acquisition Matrox Meteor ainsi que d'une carte d'affichage Matrox Millennium 2 Mo (Figure 2-3-a). La visualisation de l'échantillon est faite sur un écran 17 pouces haute résolution 1280\*1024. L'image est traitée par le logiciel Visilog-professionnel doté d'un module de décroisement de fibres (société Noesis [55]).

Différentes procédures permettent de simplifier le contenu d'une image et d'en extraire des caractéristiques spécifiques comme les limites des fibres et leurs orientations. La détection des contours peut également se faire avec une autre approche utilisant les discontinuités locales reliées aux limites des objets.

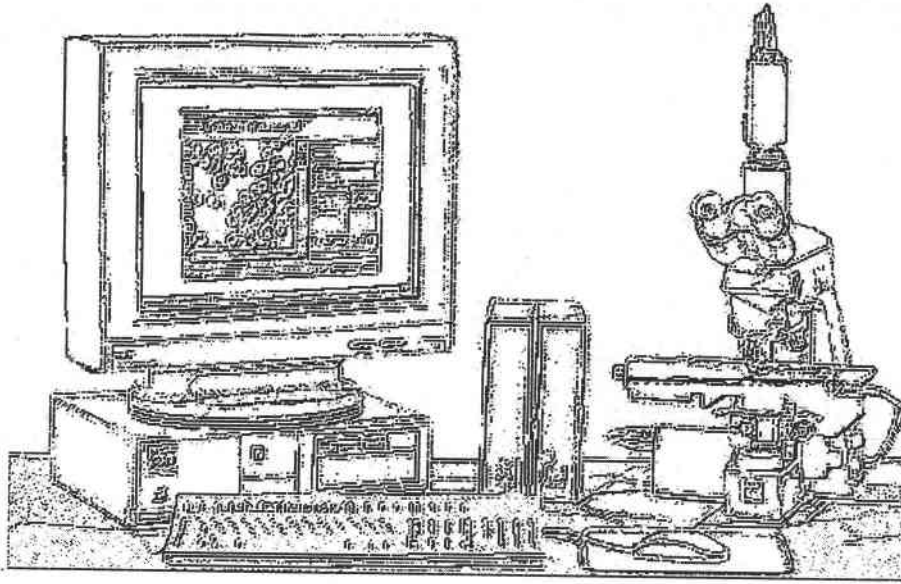


Figure 2-C-2: Présentation du matériel utilisé

### **2-C-2 Le traitement de l'image par simplification de son contenu**

L'image d'origine fournie par la caméra CCD montée sur le microscope est figée par le logiciel afin de pouvoir être traitée. Une série de filtres « en niveaux de gris » (on appellera par la suite « filtre » tout opérateur appliqué à l'image) traite l'image.

Le calcul de l'orientation nécessite d'avoir un contour de fibre bien défini et des fibres isolées. Un seuillage est effectué sur l'image résultante afin de la transformer en image binaire. Sur celle-ci, les pixels intéressants se verront affecter la valeur 1, les autres la valeur 0.

D'autres filtres (squelette, épaissement...) sont alors utilisables. Une image numérisée fidèle à l'originale permet finalement le calcul de l'orientation.

A ce niveau, il est important de détailler les étapes de l'analyse, de caractériser les filtres et de justifier leur utilisation. L'influence de chaque étape va être explicitée par son effet sur une image de départ brute de traitement (figure 2-C-3) et les conséquences sur la détermination de l'orientation commentées.

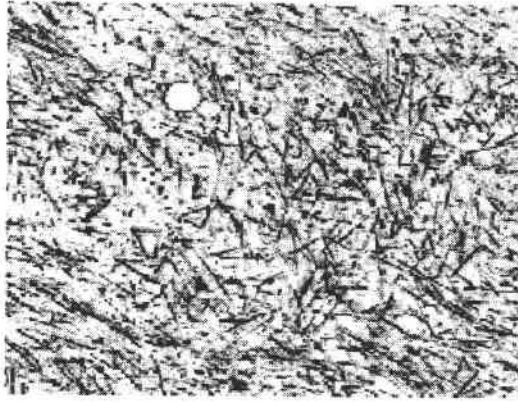


Figure 2-C-3: Image en niveaux de gris, brute de traitement.  
(fibres T300mld; résine ARC 40/32)

### 2-C-2-1 Les filtres en niveaux de gris

Une image est constituée de pixels auxquels est attribué un niveau de gris. Une manière simple de représenter une image utilise l'analogie avec le relief. Le niveau de gris associé à chaque pixel va dépendre de la hauteur du pic (figure 2-C-4). Les niveaux de gris sont compris entre 0 et 255 (nombre entier).

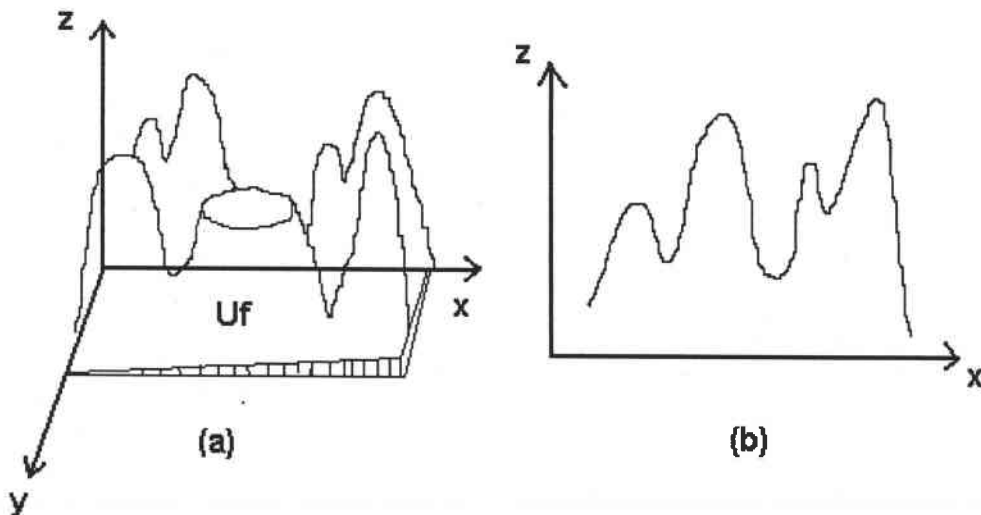


Figure 2-C-4: Relation entre l'altitude des reliefs et le niveau de gris

a- Les traitements de base d'une image: l'**érosion** et la **dilatation** d'un contour de fibre.

(i) l'érosion:

l'érosion  $E$  de la fonction  $f$  dans l'ensemble  $B$  consiste à déterminer les valeurs minimales de  $f$  dans  $B$ :

$$E\{f(x,y)\} = \text{Inf}\{f(x_i, y_j); (x_i, y_j) \text{ éléments de } B\} \quad (2-3-1)$$

L'érosion va donc réduire les pics et élargir les vallées de la fonction  $f$ .

(ii) la dilatation:

la dilatation  $D$  est la transformation duale de l'érosion. Elle est équivalente à la recherche de la valeur maximale de  $f$  dans l'ensemble  $B$ .

$$D\{f(x,y)\} = \text{Sup}\{f(x_i, y_j); (x_i, y_j) \text{ élément de } B\} \quad (2-3-2)$$

La dilatation remplit donc les vallées et élargit les pics de la fonction  $f$ .

En représentant l'image en niveau de gris sous forme d'un graphe  $f$  en deux dimensions  $y = f(x)$ , les opérations d'érosion et de dilatation peuvent être aisément représentées (figure 2-C-5).

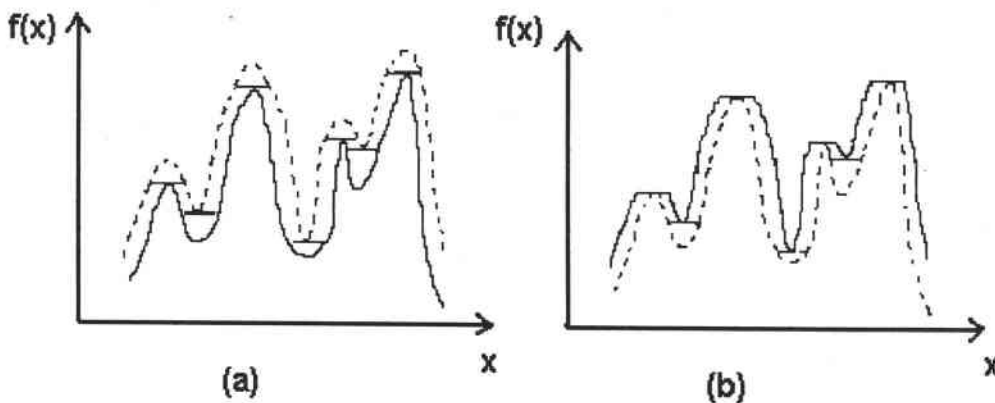


Figure 2-C-5: (a) fonction érosion, (b) fonction dilatation

( $x$  la position et  $f(x)$  le niveau de gris)

Ces opérations sont utilisées pour affiner le contour des fibres afin de bien les distinguer des artefacts et de la résine (figure 2-C-6).

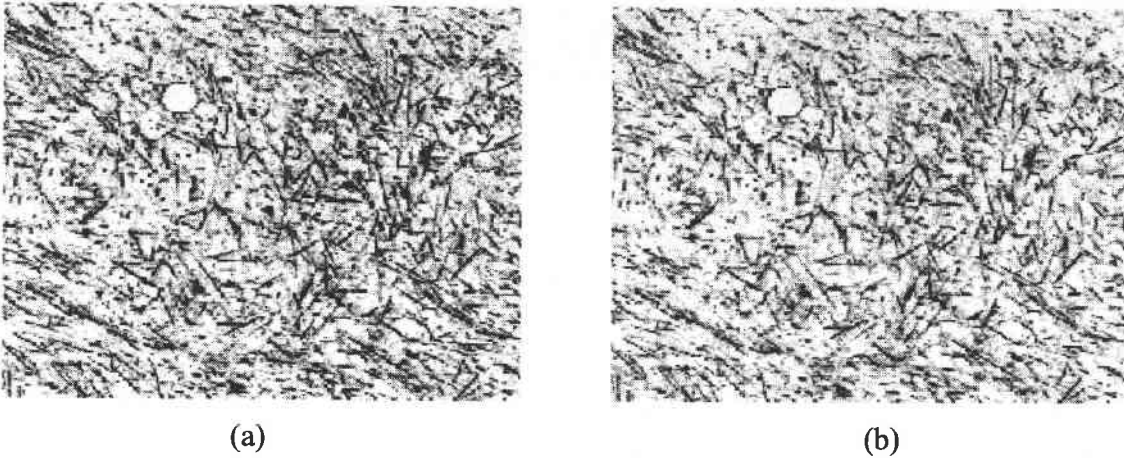


Figure 2-C-6: (a) image originale; (b) application d'érosions et de dilations

### b- Les opérations d'ouverture et de fermeture:

Ce sont des combinaisons complexes d'érosions et de dilations:

- l'ouverture pour une image en niveaux de gris est la combinaison d'une érosion par un élément et d'une dilatation par l'élément symétrique dans B;
- la fermeture est composée d'une dilatation dans B suivie d'une érosion par le symétrique dans B.

Sur une image en niveaux de gris, l'ouverture réduit la hauteur des pics (et peut même les effacer) tandis que la fermeture remplit les vallées (et peut même en faire disparaître certaines). Ces opérations sont à appliquer avec beaucoup de précautions à l'image en niveaux de gris car elles ont tendance à déformer l'image.

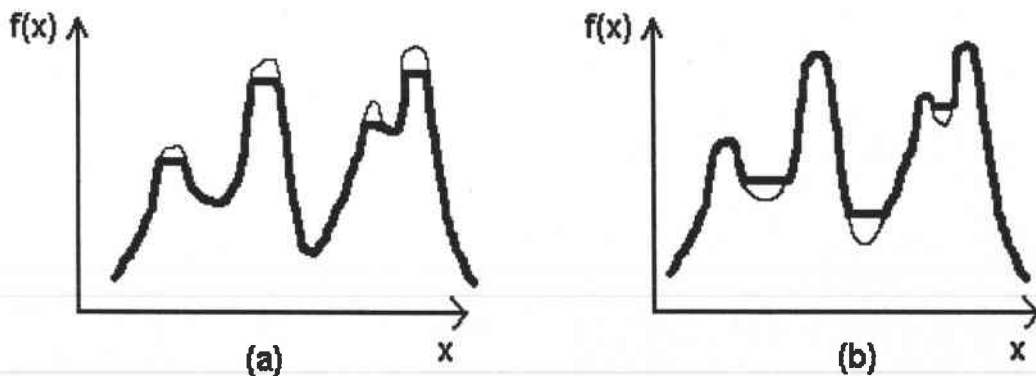


Figure 2-C-7: Opérations d'ouverture (a) et de fermeture (b)

### c- Les opérations d'affinement et d'épaississement des fibres

Elles sont utilisées sur la base des notions de minimum et de maximum pour l'érosion et la dilatation.

Comme exemple d'application de ce type de transformation, l'affinage de la fonction  $f$  par un ensemble  $V$  de pixels est défini par:

$$f \circ V(x) = \text{Sup}_{f(x)} \{Z_{bj}\} \text{ si } \text{Sup}_{\text{autre}} \{Z_{bj}\} < f(x) < \text{Inf} \{Z_{wi}\} \quad (2-3-4)$$

$Z_{wi}$  : valeurs en niveaux de gris des points de valeur 1 dans l'ensemble  $V$ ;

$Z_{bj}$  : valeurs en niveaux de gris des points de valeur 0 dans l'ensemble  $V$ .

Les points au fond des vallées sont remplacés par les points de niveau de gris maximal. Les points supérieurs des pics sont remplacés par des points de niveau de gris minimal. Tous les autres points, localisés sur les pentes, sont remplacés par des valeurs intermédiaires.

Dans le cas de l'opération d'épaississement, les points supérieurs des pics sont remplacés par des points au niveau de gris maximal et les fonds des vallées par des points de gris minimal (Figure 2-C-8).

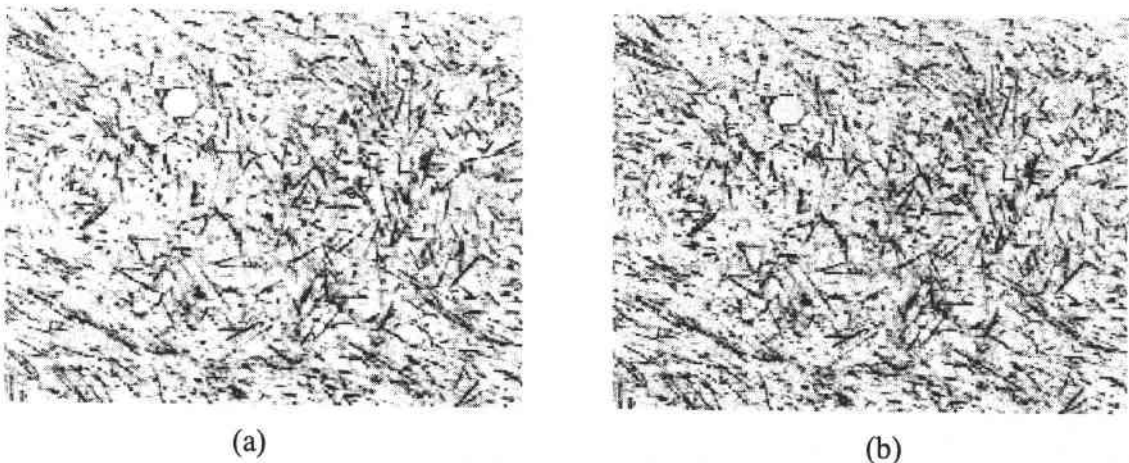


Figure 2-C-8: (a) Image de départ (figure 2-C-6 (b)); (b) Opération d'affinement et d'épaississement des fibres

Ces opérations sont très utilisées pour des concentrations en fibres inférieures à 15%. Elles permettent d'accentuer le contraste des fibres en délimitant mieux leurs contours.

### 2-C-2-2 Seuillage de l'image en niveaux de gris

Les procédures décrites ci dessous vont permettre de transformer les informations niveaux de gris en informations binaires. Pour cela, il faut seuiller l'image.

Différents seuillages sont disponibles (figure 2-C-9):

- à limite basse (a);
- à limite haute (b);
- avec deux limites (basse et haute) (c);
- seuillage avec hystérésis (d).

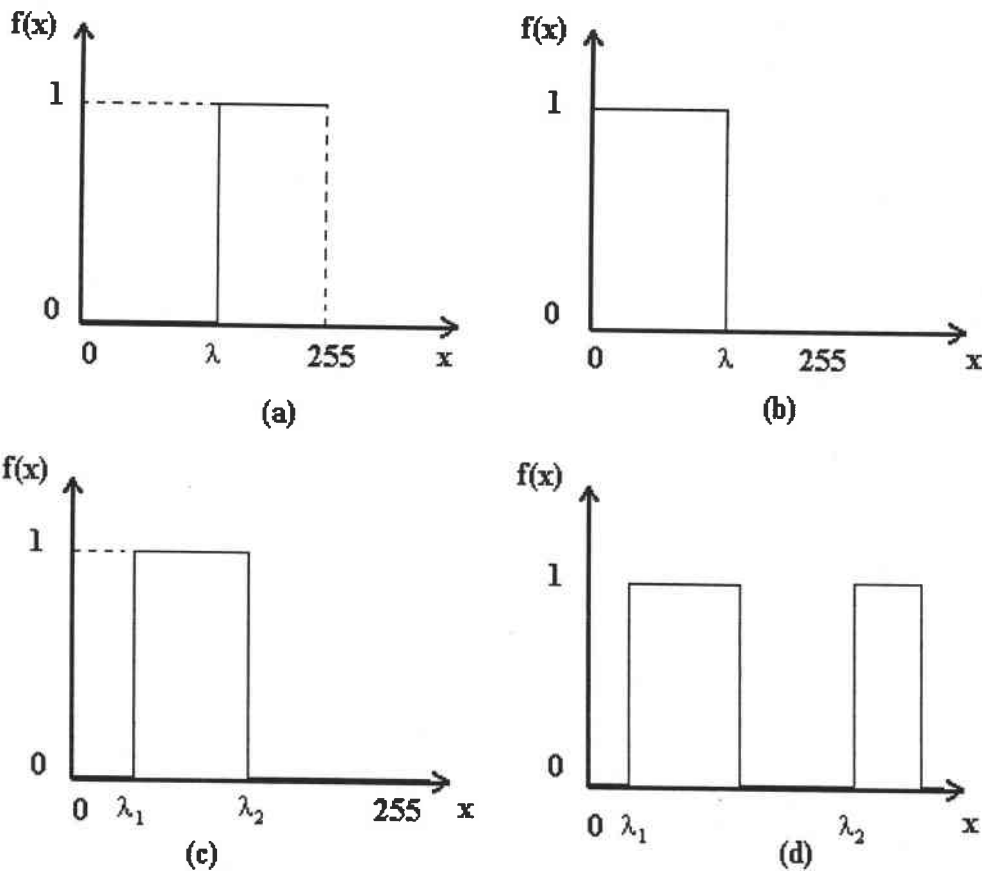


Figure 2-C-9: Les différents seuillages d'une image en niveaux de gris.

A titre d'exemple, pour un **seuillage à limite basse**, les conditions sont données par (2-3-5) avec  $I(n,m)$  le signal d'entrée et  $O(n,m)$  le signal de sortie.



$$\lambda = f(x), O(n,m) = 1 \text{ si } I(n,m) \geq \lambda \text{ et } O(n,m) = 0 \text{ si } I(n,m) < \lambda \quad (2-3-5)$$

Dans le cas d'un **seuillage à hystérisis**, les valeurs de gris  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  sont sélectionnées par l'opérateur. Le seuillage est effectué de sorte que:

- si  $I(n,m) > \lambda_2$ , l'aire est gardée et  $O(n,m) = 1$ ;
- si  $I(n,m) < \lambda_1$ , l'aire est rejetée et  $O(n,m) = 0$ ;
- si  $\lambda_1 < I(n,m) < \lambda_2$  l'aire est floue. Les points sont gardés s'ils sont connectés à une aire gardée  $O(n,m) = 1$  et sinon ils sont rejetés avec  $O(n,m) = 0$ .

Cette procédure est appelée algorithme de reconstruction.

Un exemple de traitement de l'image du matériau composite est donné par la figure 2-C-10 dans le cas d'un seuillage avec deux limites.

Les valeurs de gris sélectionnées sont  $\lambda_1 = 90$  et  $\lambda_2 = 235$ .

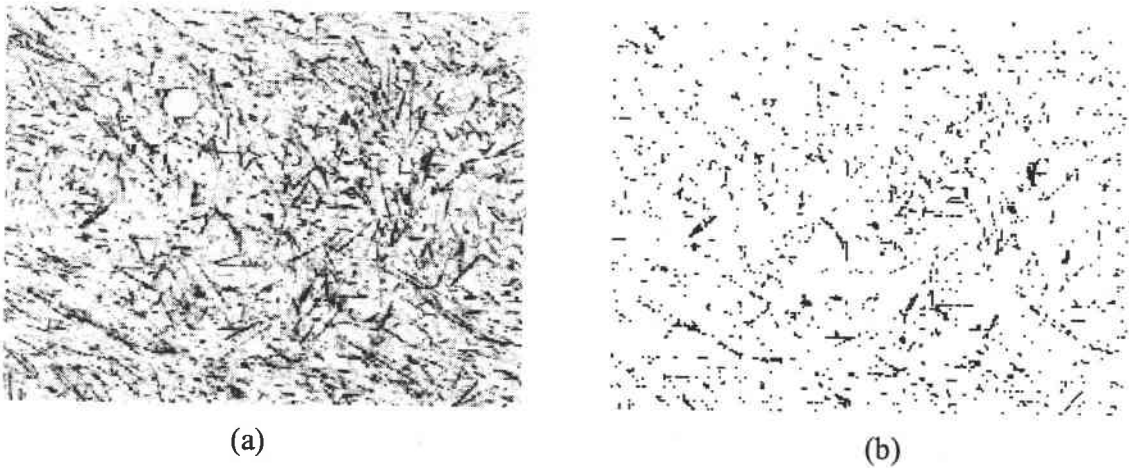


Figure 2-C-10: (a) Image de départ (Fig.2-C-8-b); (b) Image numérisée obtenue par seuillage ( $\lambda_1 = 90$  et  $\lambda_2 = 235$ )

### 2-C-2-3 Application de filtres à l'image binarisée.

Un certain nombre de filtres morphologiques sont similaires à ceux appliqués à l'image en niveaux de gris. La figure initiale 2-C-3 est maintenant traitée en insistant sur les opérations propres à l'imagerie binaire.

a - Filtres basés sur une égalisation locale des propriétés de l'image.

Différents filtres servent à faire ressortir les fibres:

- les **filtres linéaires** vont lisser les images et rendre les contours flous, on effectue dans ce cas une moyenne locale;
- les **filtres non linéaires** modifient le contraste de l'image par application de fonctions de type logarithme, exponentiel, puissance. Il y a modification de la représentation de l'image plutôt que de sa structure.

Exemple de filtre linéaire:

le filtre médian est utilisé pour "nettoyer" l'image en éliminant les bruits de fond. Si on considère un tableau de  $[3 \times 3]$  pixels centré sur le pixel  $p$  d'intensité  $X_p$  que l'on range en valeurs croissantes de l'intensité ( $X_0 \leq X_1 \leq \dots \leq X_n$ ), la nouvelle valeur de  $X_p$  est alors  $X_n/2$  si  $n$  est pair et  $X_{n+1}/2$  si  $n$  est impair (figure 2-C-11).

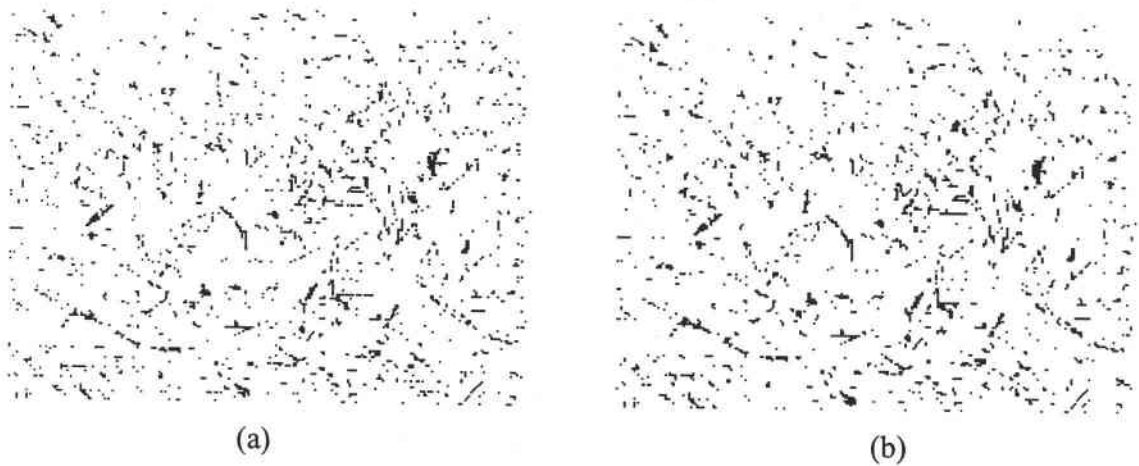


Figure 2-C-11: (a) Image binarisée (Fig.2-C-10 (b));

(b) application d'un filtre médian à l'image (a).

Ces filtres destinés à éliminer le bruit de fond ont deux avantages:

- (i) l'utilisation de la valeur médiane ne crée aucune nouvelle intensité dans l'image d'arrivée, ce qui préserve la précision des contours;
- (ii) la présence d'intensités excessives ou indésirables n'affecte pas le résultat final à la différence des filtres utilisant une moyenne arithmétique.

L'inconvénient de ces filtres est le temps de traitement. Il élimine les petites fibres.

b. Les filtres impliquant des opérations de **morphologie mathématique**.

Ces opérateurs transforment l'image, ce qui induit une perte d'informations même si les caractéristiques principales de l'image sont conservées. L'image simplifiée sert pour la détermination des orientations.

Les opérations morphologiques se divisent en deux groupes:

- les **opérations de base** (érosion, dilatation, ouverture, fermeture...) dont nous avons déjà parlé;

- les **opérations homotopiques** (squelette, inclusion, affinage, élargissement...).

Exemple: le **squelette**.

C'est une transformation basée sur l'**affinement** des pixels connectés sans casser leur lien. Afin d'**amincir** un objet on introduit la notion de **premiers voisins** selon la configuration ci dessous. Si on affecte les valeurs 0 ou 1 aux 5 voisins notés x,  $2^5=32$  voisinages possibles peuvent être représentés.

$$\begin{array}{ccc} x & & x \\ x & 1 & 0 \\ x & & x \end{array} \quad (2-3-6)$$

La configuration R (2-3-6) peut être tournée six fois de  $60^\circ$ , ce qui donne cinq autres configurations et 63 voisinages.

Dans le cas d'une image binaire, l'**affinage** d'un jeu X par un voisinage V, est noté  $X \circ V$  et défini par:

$$X \circ V = 0 \text{ si } V_x \in V \text{ et inchangé si } V_x \notin V \text{ avec } V_x \text{ le voisinage centré en } x \quad (2-3-7)$$

( $V_x$  est l'un des 63 voisinages défini précédemment.)

La configuration la plus utilisée est la configuration L (2-3-8). Les opérateurs (a), (b) et (c) sont appliqués successivement à tous les pixels de l'image binaire.

$$\begin{array}{ccc}
 \begin{array}{ccc} 1 & & \\ (a) & x & . & x \\ 0 & & 0 \end{array} & 
 \begin{array}{ccc} & 1 & 1 & 1 \\ (b) & x & . & x \\ & 0 & 0 & 0 \end{array} & 
 \begin{array}{ccc} & & 1 & x & 1 \\ (c) & x & . & x \\ & 0 & 0 & 0 \end{array}
 \end{array} \quad (2-3-8)$$

L'**affinage** est effectué avec rotation de la configuration à chaque itération et ce jusqu'à ce que plus aucune modification n'apparaisse dans le jeu de pixels. On obtiendra un enchaînement de pixels connectés (figure 2-C-12 (b)).

**Remarque:** Certains affinements simplifient la représentation des objets tout en préservant leur structure. De tels opérateurs sont dits **homotopiques**. Un objet et son squelette sont homotopiques, c'est la raison pour laquelle on peut dire qu'ils ont la même structure.

Les applications directes de ce type d'opérateur sont la détermination de la direction d'une particule allongée ainsi que la segmentation de ces mêmes particules (on détecte leurs points triples et extrémités).

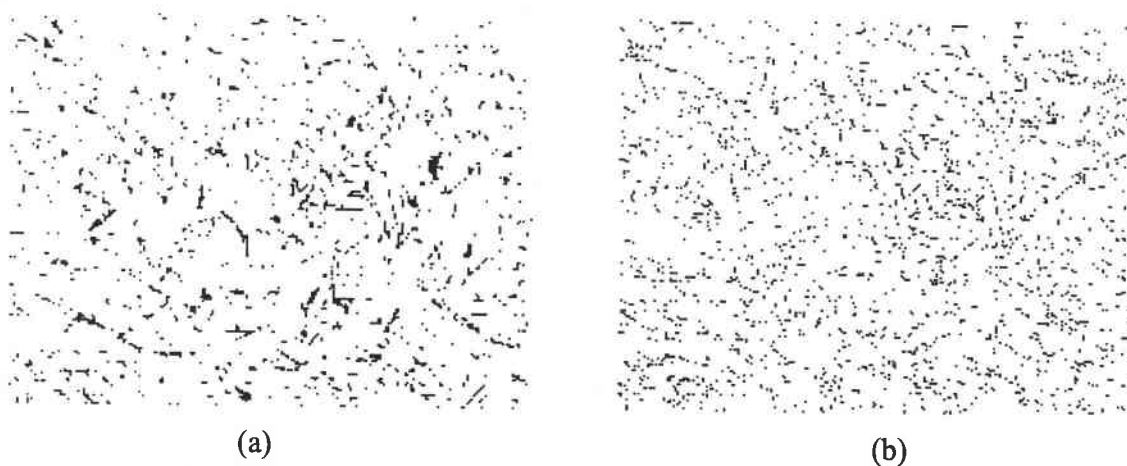


Figure 2-C-12: (a) Image binaire filtrée (Fig. 2-C-10 b); (b) Squelette des fibres.

A l'aide de ces différentes opérations il a été possible d'éclaircir les amas de fibres et d'en isoler les fibres. Afin d'éviter que ces dernières ne soient éliminées lors du seuillage, il est nécessaire d'effectuer une opération d'**épaississement (Thickening)**. Une fois le squelette des fibres établi, leur largeur est d'un pixel. Pour des fibres perpendiculaires au plan de l'image, la surface est donc d'un pixel carré. Elles seront éliminées lors du calcul de l'orientation.

Les particularités ainsi que les applications de l'épaississement sont identiques à celles indiquées dans le cas de l'image en niveaux de gris. L'image finale obtenue est représentée sur la figure 2-C-13.

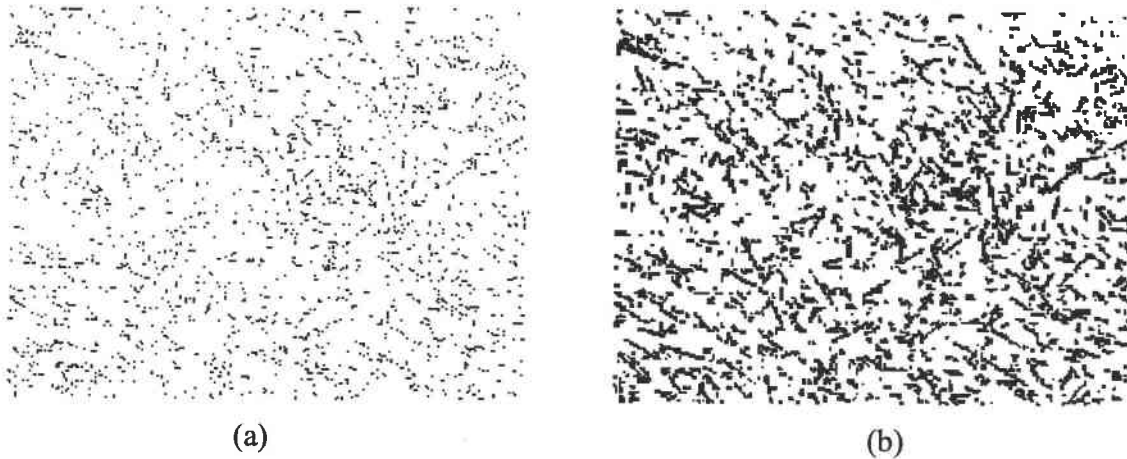


Figure 2-C-13: (a) Squelette des fibres (Fig.2-C-12 (b)); (b) Epaississement des fibres

La liste des opérations de morphologie mathématique citée est non exhaustive. Ne sont cités que les opérateurs les plus efficaces lors des analyses effectuées pour ce travail.

En conclusion, les opérateurs morphologiques de base ne préservent pas la structure géométrique des images binaires car elles peuvent effacer de petits objets, relier des objets fermés...

### **2-C-3 Traitement de l'image par détection des discontinuités locales**

Un contour est défini comme une discontinuité dans l'intensité du signal. Ce signal est souvent atténué par le bruit. Le contour est alors défini comme une transition entre une moyenne basse et une moyenne haute de l'intensité.

Les contours sont caractérisés par leur contraste et leur largeur. Une fois le contour des fibres bien déterminé, des filtres morphologiques sont utilisés pour affiner les détails de l'image. Un seuillage est effectué et des filtres binaires peuvent être appliqués (annexe 3).

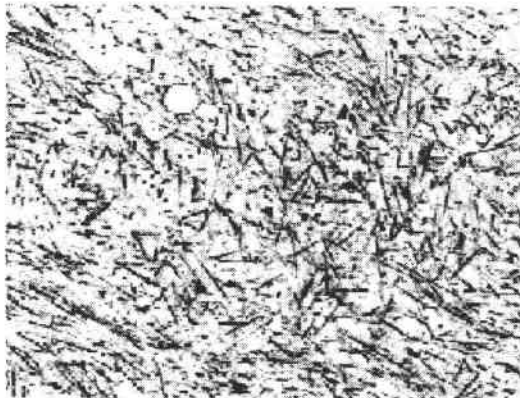
### **2-C-4 Bilan des méthodes testées - Influence du facteur temps - les erreurs**

Plus de 400 échantillons ont été soumis à l'analyse d'images ce qui correspond à environ 3400 images. Il ressort de cette étude que l'analyse d'images doit être utilisée avec beaucoup de précautions.

Un certain nombre de filtres dénaturent totalement l'image originale en cas de mauvaise utilisation où tout simplement du fait de leur simple application. L'objectif étant de déterminer l'orientation des fibres, il est impératif de ne pas dénaturer l'image car on risque de fausser largement les résultats.

A titre d'exemple, un cas extrême obtenu pour un échantillon traité de manière inadéquate est présenté sur la figure 2-C-14. Les orientations obtenues sont erronées.

Le schéma d'analyse suivi jusqu'à présent devra donc être adapté à l'échantillon traité. Certaines étapes pourront être supprimées et, pour chaque étape, l'intensité du traitement sera ajustée au mieux par comparaison à l'image originale.



(a)

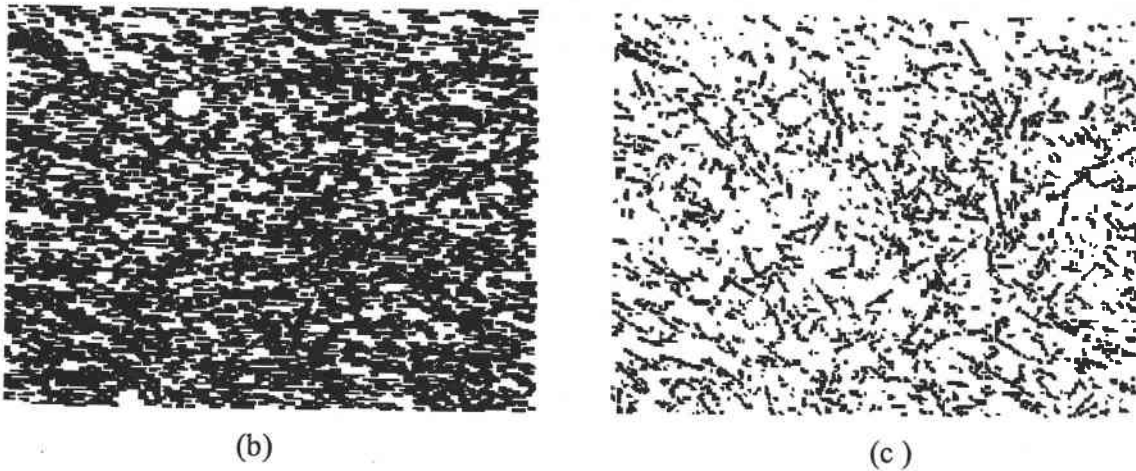


Figure 2-C-14: (a) Image originale (2-C-3); (b) Mauvais filtres; (c) Filtrages adaptés.

**Cas particulier:** les forts taux de fibres.

Dans ces échantillons, il existe des amas à l'intérieur desquels l'orientation des fibres est constante. Ces amas sont traités en considérant que sur tout l'échantillon, l'orientation moyenne des amas est nulle (cas isotrope).

L'individualisation des fibres n'est pas nécessaire dans ce cas, d'où un gain de temps important. Cette approximation grossière perturbe toutefois la statistique des fibres puisqu'un amas est finalement assimilé à une seule fibre. L'erreur dans le calcul de l'orientation s'avère néanmoins minime.

Dans le cas d'un échantillon aléatoire, pour des amas de tailles identiques, l'hypothèse d'isotropie est bien vérifiée. Il en sera de même dans le cas des échantillons orientés. Les amas sont en effet insensibles à l'action des champs d'orientation.

## 2-D. LA DETERMINATION DES CARACTERISTIQUES SPATIALES DES FIBRES

### 2-D-1 Le décroisement des fibres

Avec l'augmentation de la concentration, les fibres ont de plus en plus tendance à se toucher et à se superposer. Afin de déterminer une orientation réaliste de l'échantillon il s'avère important de les décroiser.

Le logiciel que nous utilisons est muni d'un module de décroisement de fibres conçu par la société SOLVAY [56]. Le principe de ce module est basé sur la forme supposée des fibres une fois l'image binarisée (objet rectiligne de longueur et diamètre finis).

Une fibre courte est assez rigide pour être considérée comme un segment de droite. A l'aide d'opérations morphologiques (détermination du squelette et des points triples), le logiciel évalue la courbure des objets ainsi que les angles qu'ils font entre eux, ce qui permet le décroisement (figure 2-D-1).

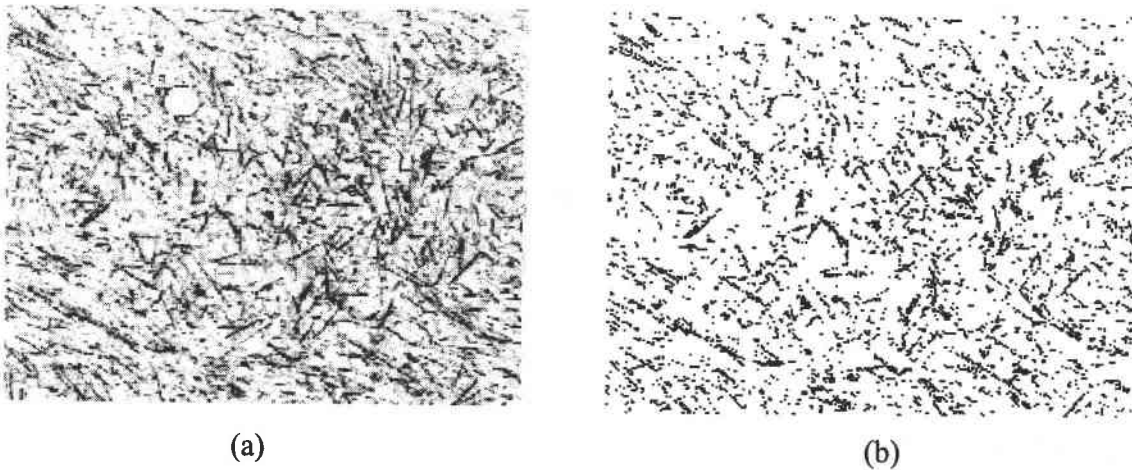


Figure 2-D-1: (a) Image originale (Fig.2-C-3); (b) Application du décroisement des fibres.

Une bonne individualisation des fibres est obtenue dans les croisements mettant en jeu jusqu'à dix fibres.

Les limites de ce procédé portent sur la taille des fibres utilisées (largeur supérieure à 1 pixel et longueur inférieure à 725 pixels) mais aussi sur le traitement de l'image. La concentration en fibres ne doit pas être supérieure à 15% pour espérer des résultats corrects. Les fibres doivent être réparties de façon homogène. L'analyse d'agrégats trop importants est impossible et perturbe l'ensemble du traitement.

Ce logiciel de décroisement doit donc aussi être utilisé avec précautions. D'un autre côté, il est à noter que son utilisation est coûteuse en temps.



## 2-D-2 La détermination de l'orientation planaire

Cette étape consiste à extraire les paramètres caractéristiques de l'image et à en déduire des « mesures ». Ces paramètres se divisent en deux classes:

### (a) Les mesures locales.

Elles sont obtenues par segmentation de l'objet original en une union d'éléments disjoints. La mesure locale est définie comme la somme des mesures élémentaires des jeux disjoints. Par exemple, une surface est décomposée en pixels.

### (b) Les mesures globales.

Elles se déduisent de la décomposition précédente. Elles nécessitent la connaissance de la totalité de l'objet à traiter. Par exemple, les diamètres de Feret [55] ne peuvent être calculés qu'à partir des diamètres de Feret des sous objets. Ces mesures globales doivent être associées à des objets totalement visibles n'ayant pas d'intersection avec les limites du champ optique.

Les mesures induites sont des caractéristiques locales (orientation, longueur des fibres, facteur de forme...).

La technique de calcul de l'orientation est utilisée dans le cas d'une image binaire puis dans le cas d'une image en noir et blanc.

### 2-D-2-1 Analyse de l'orientation sur une image binaire.

L'orientation  $\theta$  des fibres dans le matériau composite est définie comme l'orientation de l'axe principal d'inertie. C'est une grandeur associée à la plus grande valeur propre de la matrice d'inertie:

$$M = \begin{vmatrix} M_{2x} & M_{2xy} \\ M_{2xy} & M_{2y} \end{vmatrix} \quad \text{et} \quad \theta = \frac{1}{2} \arctan \frac{M_{2xy}}{M_{2x} - M_{2y}} \quad (2-3-18)$$

Il est donc nécessaire de calculer les moments d'inertie qui fournissent les caractéristiques globales de la forme des objets.

Les moments d'ordre 1 donnent le barycentre. Ils sont définis par (2-3-19) dans le cas général, et par (2-3-20) dans le cas discret.

$$M_{1x} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \int x dx dy \quad \text{et} \quad M_{1y} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \int y dx dy; \quad (2-3-19)$$

$$M_{1x} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum x_i \quad \text{et} \quad M_{1y} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum y_j; \quad (2-3-20)$$

$A(x)$  est la surface de la fibre  $X$  et  $(x_i, y_j)$  un point intérieur.

Les moments du second ordre sont donnés par:

$$M_{2x} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \int (x - M_{1x})^2 dx dy; \quad (2-3-21)$$

$$M_{2y} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \int (y - M_{1y})^2 dx dy; \quad (2-3-22)$$

$$M_{2xy} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \int (x - M_{1x})(y - M_{1y}) dx dy. \quad (2-3-23)$$

La FDO calculée pour la figure 2-D-1 (b) est la suivante:

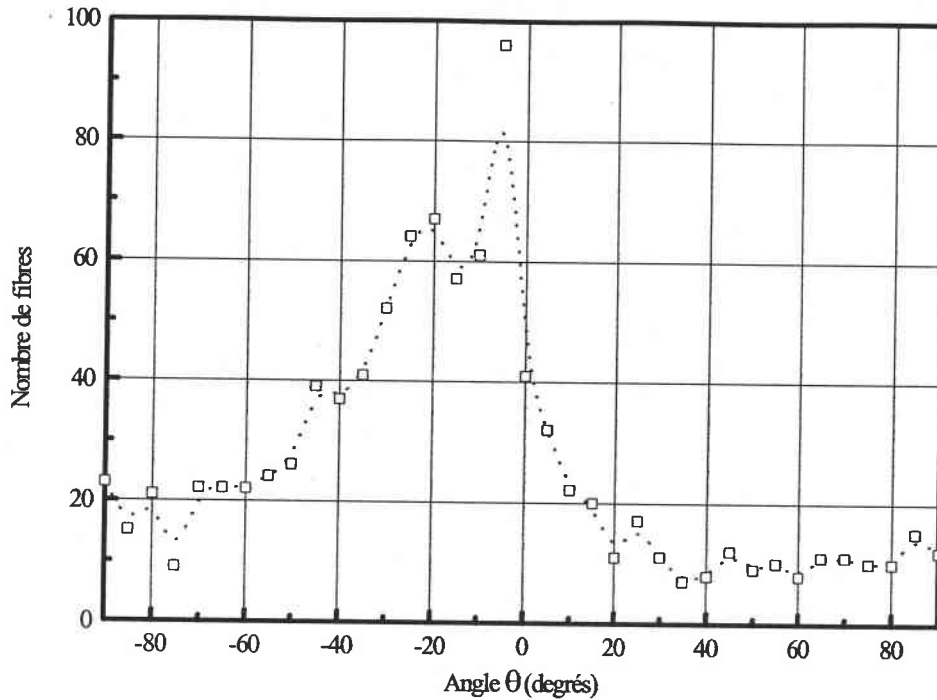


Figure 2-D-2: Fonction de distribution en orientation de fibres de carbone en fonction de l'angle  $\theta$  ( $F_p=0.335$  pour 15% T300mld, résine ARC 40/32, non traité sous champs)

Dans le cas discret, les moments d'inertie du second ordre s'écrivent:

$$M_{2x} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum (x_i - M_{1x})^2 ; \quad (2-3-24)$$

$$M_{2y} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum (y_i - M_{1y}) ; \quad (2-3-25)$$

$$M_{2xy} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum (x_i - M_{1x})(y_i - M_{1y}). \quad (2-3-26)$$

La direction principale des fibres sur l'image binarisée se détermine également à l'aide de la rose des directions [55] qui caractérise la structure directionnelle des fibres en utilisant une distribution angulaire. Il s'agit d'un outil théorique puissant qui permet de trouver la direction principale d'un objet mais reste difficile à mettre en œuvre. Cette option ne sera pas utilisée dans notre travail.

### 2-D-2-2 L'analyse de l'orientation sur une image en niveaux de gris.

Le calcul de l'orientation des fibres peut se faire directement sur l'image en niveaux de gris. Pour cela il faut utiliser:

- les moments du premier ordre définis, pour une image binaire, par:

$$M_{1x} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum x_i * g(x_i, y_j); \quad (2-3-31)$$

$$M_{1y} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum y_j * g(x_i, y_j); \quad (2-3-32)$$

- les moments du second ordre qui s'écrivent:

$$M_{2x} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum (x_i - M_{1x})^2 * g(x_i, y_j); \quad (2-3-33)$$

$$M_{2y} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum (y_j - M_{1y})^2 * g(x_i, y_j); \quad (2-3-34)$$

$$M_{2xy} = \frac{1}{A(x)_{\text{aire}}} \sum (x_i - M_{1x})(y_j - M_{1y}) * g(x_i, y_j); \quad (2-3-35)$$

avec  $A(x)$  l'aire de l'objet,  $(x_i, y_j)$  un point de  $x$  et  $g(x_i, y_j)$  son intensité.

Cette méthode ne sera que peu exploitée ici. Elle nécessite en effet une image binaire où les fibres sont très bien définies. Ceci n'est pas le cas pour les matériaux que nous avons élaborés. A titre d'exemple, la distribution de l'orientation est à nouveau calculée pour la figure 2-C-3 mais à partir des niveaux de gris.

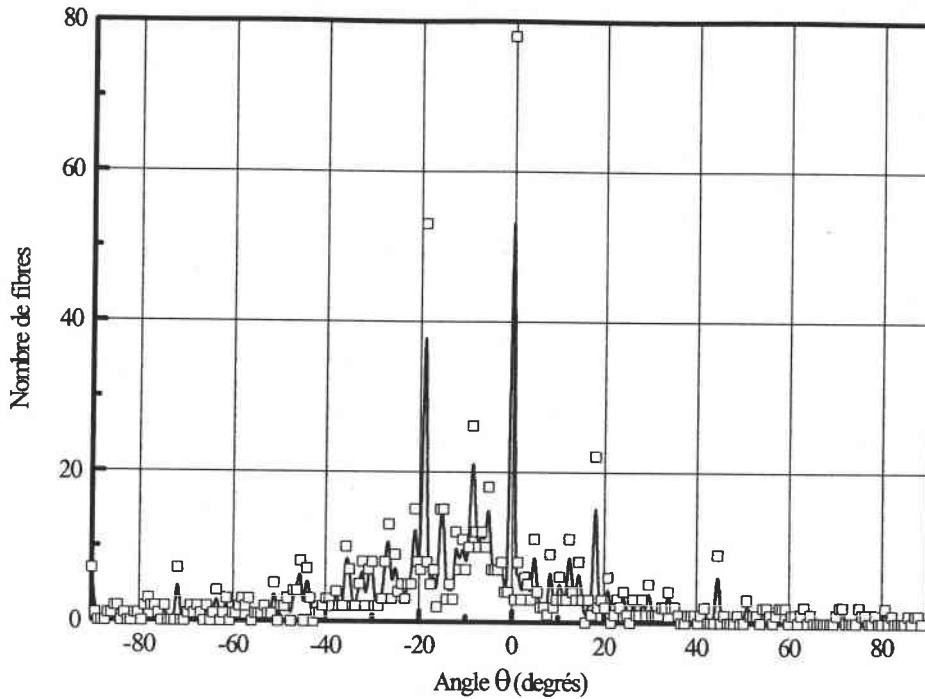


Figure 2-D-3: Fonction de distribution en orientation calculée sur l'image en niveaux de gris ( $F_p=0.571$  pour des fibres T300mld, résine ARC 40/32, non traité sous champs)

### 2-D-2-3 Comparaison des deux types d'analyse (Figures 2-D-2 et 2-D-3)

Si l'on compare la FDO de l'image en niveaux de gris à celle provenant de l'image binarisée et filtrée, les différences sont évidentes. Les deux images initiales sont identiques mais les FDO calculées et les facteurs d'orientation  $F_p$  sont très différents. Cette observation est encore plus vérifiée pour les fortes concentrations en fibres. Dans ce cas, il sera nécessaire de binariser et filtrer l'image afin de bien identifier les fibres ou groupes de fibres présents.

Dans le cas d'une faible concentration en fibres, une analyse en niveaux de gris est rapide et précise. Les résultats obtenus sont identiques à ceux provenant d'une image binarisée. Pour des concentrations en fibres plus élevées, les différentes opérations de filtrage et de détection nécessitent de travailler sur une image binarisée afin d'obtenir une orientation exacte de l'échantillon.

### 2-D-3 Calcul du rapport de forme des fibres

La forme des fibres ne peut pas être caractérisée par une seule mesure ou même par un simple jeu de mesures. Parmi les grandeurs pouvant servir à préciser la forme, la plus commune est le rapport de forme:

$$F_c = \frac{L(x)^2}{4 * \pi * A(x)^2} \quad (2-3-36)$$

avec:  $A(x)$ : aire de l'élément  $x$ ;  $L(x)$ : périmètre de l'élément  $x$ .

Le rapport de forme est invariant par rotation, par réflexion, à toute variation d'échelle. C'est un nombre sans dimension. Il est égal à 1 pour un disque.

$F_c$  n'est pas une mesure locale directe mais s'obtient par une combinaison de mesures locales. Il est ainsi nécessaire de mesurer la longueur et l'aire des fibres (figure 2-D-4).

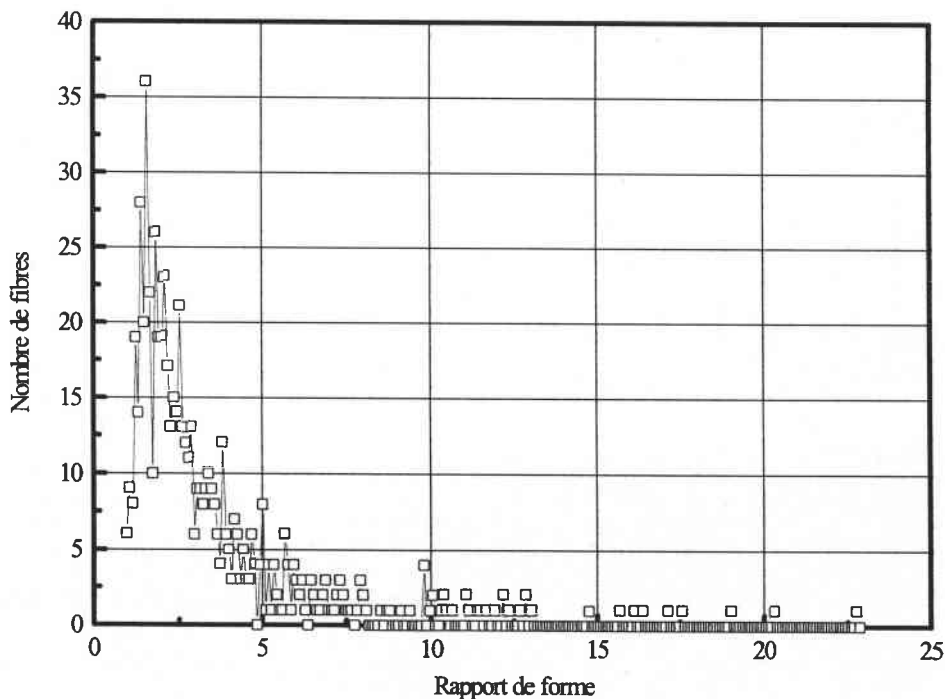


Figure 2-D-4: Rapport de forme calculé sur une distribution de fibres T300 mld

## 2-E CONCLUSION

L'analyse d'images est une méthode rapide et facile d'utilisation du fait de la convivialité des logiciels. Elle demande cependant certaines précautions.

La détermination de l'orientation, de la longueur et du facteur de forme des fibres dans un matériau composite est précise si on se limite au cas planaire et à des taux de fibres inférieurs à 15%. Au delà de 20%, la proximité des fibres nécessite de les individualiser ce qui demande beaucoup de temps. Pour des concentrations supérieures à 25%, la séparation des fibres devient très difficile. Les agrégats de fibres de tailles identiques sont assimilés à une fibre seule. Il en résulte un gain de temps important et une perte minime d'informations.

Une fois l'orientation des fibres obtenue, la fonction de distribution en orientation des fibres est utilisée dans l'état ou plus souvent intégrée dans le calcul du facteur d'orientation  $F_p$  ou du paramètre  $\lambda$  défini par Kacir [31].

## 2-F BIBLIOGRAPHIE

- [1] Jeffery G.B., Proc. Roy. Soc., A102, 161 (1922).
- [2] Folgar F., Tucker C.L., J. Reinf. Plast. and Comp., Vol 3, 98, Avril 1984.
- [3] Advani S.G., Tucker C.L., J. Rhéol., 31 (8), 751 -789 (1987).
- [4] Mason S.G., Manley R., Proc. Roy. Soc., A238, 117 (1957).
- [5] Harris J.B., Pittman J.F.T., J. Colloid. Interface Sci., 50 280 (1975).
- [6] Gupta M., Wang K.K., Polym. Comp., Vol.14, n° 5, Octobre 1993.
- [7] Koch D.L., Shaqfeh E.S.G., Phys. Fluids, A2, 1077 (1990).
- [8] Stover C.A., Koch D.L., Cohen C., J. Fluid. Mech., 238-277, (1992).

- 
- [9] Dinh S.M., Armstrong R.C., *J. Rheol.*, 28, 207-227 (1984).
- [10] Matsuoka T., Takabatake J.I., Inoue Y., Takahashi H., *Polym. Eng. Sci.*, Vol. 30, 10, Août 1990.
- [11] Altan M.C., Advani S.G., Güçeri S.I., Pipes R.B., *J. Rhéol.*, 33 (7), 1129-1155, (1989).
- [12] Ranganathan S., Advani S.G., *J. Rhéol.*, 35 (8), Nov. (1991).
- [13] Jackson W.C., Advani S.G., Tucker C.L., *J. Comp. Mat.*, 20, 539, (1986).
- [14] Hand G.L., *J. Fluid. Mech.*, 13, 33 (1962).
- [15] Mc Grath J.J., Wille J.M., *Comp. Sci. Tech.*, 53, 133-143, (1995).
- [16] Onat E.T., Leckie F.A., *J. Appl. Mech.*, 55, 1 (1988).
- [17] Hinch E.J., Leal L.G., *J. Fluid. Mech.*, 76, 187, (1976).
- [18] Tucker C.L., *J. Non Newtonian Fluid. Mech.*, 39, 239, (1991).
- [19] Ko J., Youn J.R., *Polym. Comp.*, Vol. 16 n°2 Avril 1995.
- [20] Boeder P., "Über Stromungsdoppelbrechung", *Zeitung of Physik*, Vol.75, p°258.
- [21] Lipscomb G.G., Denn M.M., Hur D.V., Boger D.V., *J. Non Newtonian Fluid Mech.*, 26, 297 (1988).
- [22] Doi M., *J. Polym. Sci, Polym. Phys. Ed.*, 19, 229, (1981).
- [23] Marrucci G., Grizzuti N., *J. Non Newtonian Fluid. Mech.*, 14, 103, (1984).
- [24] Hermans P.H., "Contribution to the Physics of cellulose fibers », Elsevier, Amsterdam (1946).
- [25] Leterrier Y., "Evolution rhéologique et structurale d'un composite polypropylène / fibres de verre lors de son estampage", thèse INPL (1991).



- [26] Jayaraman K., Kortshot M.T., *J. Math. Sci.*, 31, 2059-2064, (1996).
- [27] Fukuda H., Kawata K., *Fibre Science and Technology*, Vol.7, 207-222 (1974).
- [28] Fukuda H., Chou T.W., *J. Matériaux Science*, Vol.17, 1003-1011 (1982).
- [29] Cox H.L., *Brit. J. Appl. Phys.*, 3, 72, (1952).
- [30] Kacir L., Narkis M., Ishai O., *Polym. Eng. Sci.*, 17, 234-241 (1978).
- [31] Xia M., Harrada H., Mackawa Z., *Int. Polym. Process*, 5, 74-81, (1995).
- [32] Fu S.Y., Lauke B., *Comp. Sci. Tech.*, 56, 1179-1190, (1996).
- [33] Fisher G., Eyrer P., *Polym. Comp.*, Vol. 9, n°4, Août 1988.
- [34] Termonia Y., *J. Polym. Sci. : Part B: Polym. Phys.*, Vol. 32, 969-979, (1984).
- [35] Kuhn H.G., Grun R., *Kolloid Z.*, 101, 248, (1942).
- [36] Mc Cullough R., « *Treatise on matériel Science and Tech.* », 10B, P453, Academic Press Inc., New York (1977).
- [37] Templeton P.A., *J. Reinf. Plast. Comp.*, Vol. 9, Mai 1990.
- [38] Choy C.L., Leung W.P., Kowk K.W., Lau F.P., *Polym. Comp.*, Vol. 13, n°2, Avril 1992.
- [39] Akay M., Barkley D., *J. Mat. Sci.*, 26, 2731-2742, (1991).
- [40] Bertilsson H., Franzen B., Klason C., Kubat J., Kitano T., *Polym. Comp.*, Vol. 13, n°2, Avril 1992.
- [41] Fakirov S., Fakirova C., *Polym. Comp.*, 6, 41, (1985).
- [42] Funabashi M., Kitano T., *Transaction*, Vol. 50, n°12, (1994).
- [43] Pike G.E., Seager C.H., *Phys. Rev.B*, 10, 1421, (1974).
- [44] Hmurcik L.V., Kinsler M.R., *J. Comp. Mat.*, 22, 360 (1988).

- [45] Mc Gee S.H., Mc Cullough R.L., *J. Appl. Phys.*, 55, 1394, (1984).
- [46] Lourich M.L., Tucker C.L., *Spe. Antec. Tech. Papers*, 31,1119, (1985).
- [47] Gadala Maria F., Parsi F., *Polym. Comp.*, Vol 14, n°2, Avril 1993.
- [48] Frei W., Chen C.C., *IEEE Trans Computers*, C26, 988, (1977).
- [49] Ance G.R., Gallager N., Nodes T., "Median filters: theory for one and two dimentional filters", Huang, JAI Press (1986).
- [50] Horn H.R.F., Waltinger H.G., *Scanning*, 1, 100, (1978).
- [51] Heckman C., Ransteiner F.H., *Leitz Mitt. Wiss. v. Tech. Suppl.*, Bd1, 6, 216-221, (1980).
- [52] Weibel E.R., *Stéréological Méthods*, Vol. 1, Acad. Press London, (1979).
- [53] O'Connell P.A., Duckett R.A., *Comp. Sci. Tech.*, 42, 329-347, (1991).
- [54] Thomas F., Meyer H.R., *Plast. and Rubber Process.*, 99-108, Septembre 1976.
- [55] Noesis, "A tutorial on image processing", Noesis (1991).
- [56] SOLVAY, Belgique (1994).

## **CHAPITRE 3:**

# **L'ORIENTATION DANS UN COMPOSITE A FIBRES COURTES**

Une amélioration importante de certaines propriétés physiques d'un matériau est obtenue par l'ajout d'inserts (billes, fibres, whiskers...) [1]. Cette amélioration est encore accentuée par l'alignement des inserts, tels que les fibres ou les whiskers, avec la direction de sollicitation [2]. Dans la suite de cette étude, on se limitera aux fibres courtes.

Des méthodes ont été développées pour orienter les fibres dans une direction donnée afin d'améliorer les propriétés mécaniques, thermiques ou électriques d'un matériau. Parmi ces méthodes, on peut citer les procédés d'injection, d'extrusion mais aussi l'utilisation de champs magnétiques ou électriques qui orientent des fibres métallisées dans une direction voulue [15].

Une méthode originale a été développée dans notre équipe [3]. Elle permet d'orienter des fibres de bonne conductivité électrique à l'aide d'un dispositif associant un champ magnétique haute fréquence et un champ magnétique statique.

Après une présentation des différentes méthodes d'orientation, l'élaboration d'un matériau composite formé de fibres courtes de carbone dans une résine époxyde est détaillée et analysée. Les points importants sont repris dans le cadre de l'utilisation de notre dispositif d'orientation.

### **3-1 Les méthodes d'orientation des fibres courtes dans une matrice homogène**

#### **3-1-1 Les méthodes classiques**

##### **a- Les procédés**

Ces méthodes d'orientation ont l'avantage de ne dépendre que des caractéristiques morphologiques des fibres. C'est ainsi qu'une augmentation de la longueur des fibres va rendre l'orientation plus difficile. Il faudra modifier les paramètres de mise en forme (vitesse d'injection, température...).

##### **(i) - L'injection**

Cette méthode consiste à pousser le mélange fibre - résine dans une tubulure de dimensions données à l'extrémité de laquelle est fixée le moule. Elle peut se faire à l'air libre ou à pression et température fixée. Une orientation des fibres est obtenue par le simple fait de l'écoulement du mélange dans la tubulure.

Dans le cas du procédé d'injection, une adaptation du dispositif (par exemple la longueur ou le diamètre du canal d'injection) ainsi que le choix d'une vitesse d'injection appropriée permettent d'orienter efficacement une partie des fibres du matériau [4]. Cette orientation n'est toutefois que partielle (effet des turbulences créées à l'entrée du moule), trois domaines pouvant être distingués dans le matériau:

- (1) la couche de peau qui forme la partie la plus externe du matériau, les fibres y sont bien orientées dans le sens de l'injection ( $F_p \sim 0.5$ );
- (2) la couche de cœur située au milieu du matériau: les fibres ont tendance à s'orienter perpendiculairement à la direction d'injection ( $F_p \sim 0.1$ );
- (3) la couche moyenne comprise entre ces deux extrémités, l'orientation des fibres y est faible ( $F_p \sim 0.3$ ).

Les paramètres d'injection sont modulés de façon à augmenter l'importance de la couche de peau et diminuer la couche de cœur [5,6,7]. Ceci permet d'augmenter le facteur d'orientation global du matériau (calculé comme la moyenne des facteurs d'orientation de chacune des trois couches). Les facteurs d'orientation globaux obtenus peuvent alors aller jusqu'à 0.7.

(ii)- La méthode **push - pull** [8] (figure 3-1)

Cette méthode est une amélioration du procédé d'injection. Elle consiste à augmenter l'importance de la couche de peau au détriment de la couche moyenne et de la couche de cœur. Le dispositif est constitué d'un moule équipé de deux entrées **a** et **b** opposées pour l'injection. Après une première injection par l'entrée **a**, la partie de peau au contact du moule est gardée tandis que les parties moyennes et de cœur sont aspirées par l'entrée **b** puis réinjectées dans le moule. On ne gardera à nouveau que la couche de peau et ainsi de suite.... Il en résulte des facteurs d'orientation qui peuvent être très élevés ( $F_p \sim 0.8$ ).

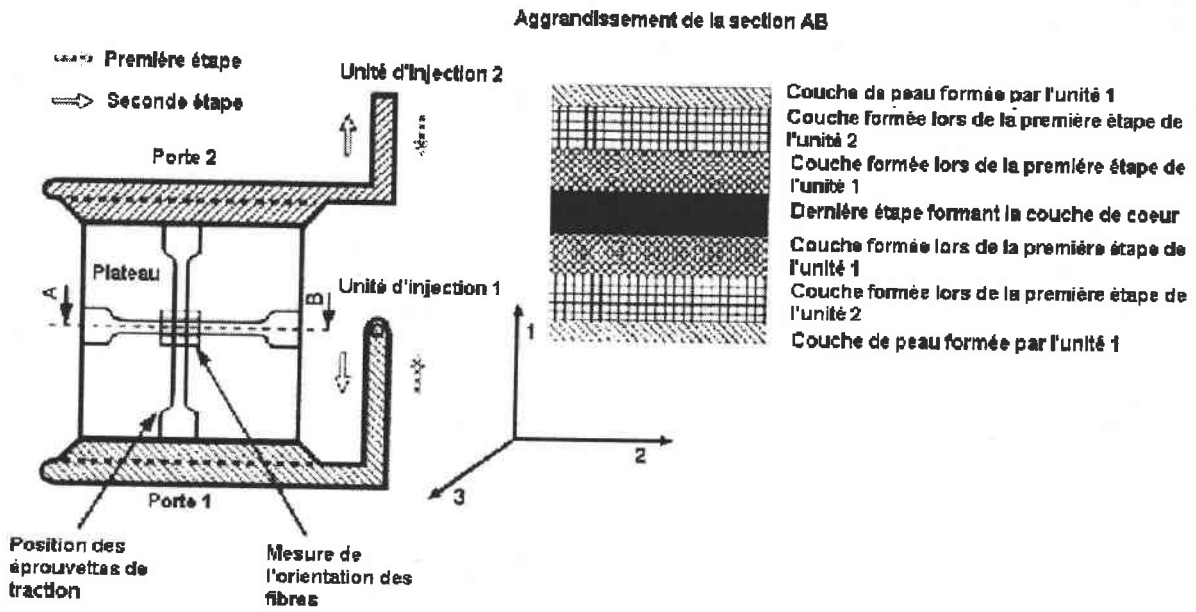


Figure 3-1: La méthode push-pull développée par Mc Grath et Wille [28]

(iii)- Orientation des fibres par une vis d'extrusion (figure 3-2)

Dans ce procédé, une vis sans fin force le mélange fibre - résine dans le moule [9]. L'orientation des fibres est inférieure à celle obtenue par injection. La vis homogénéise l'orientation des fibres dans le matériau de sorte que les couches de peau et de cœur soient réduites au profit de la couche moyenne. On obtient ainsi un grand domaine intermédiaire où l'orientation est faible ( $F_p \sim 0.3$ ) et des couches de peau et de cœur plus petites [10].

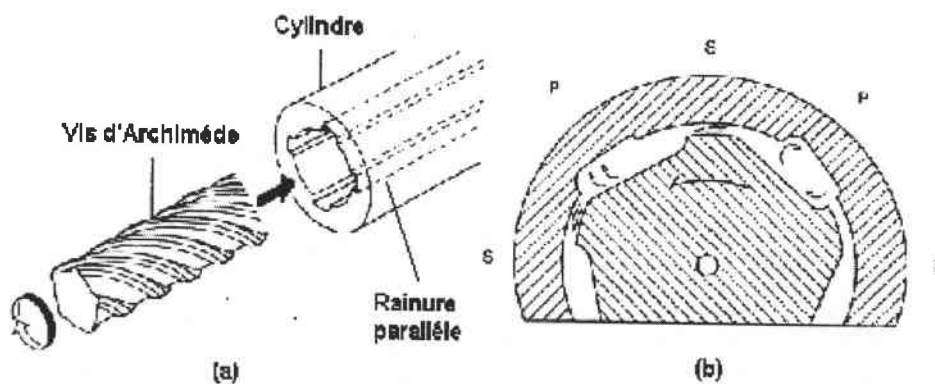


Figure 3-2: Système d'injection: (a) configuration de la vis et du cylindre; (b) action de dispersion dans la machine

Certaines améliorations de ce procédé permettent d'améliorer l'orientation globale du matériau [11].

### b- Les théories

L'explication du mécanisme d'orientation des fibres lors des divers procédés indiqués ci dessus relève de la mécanique des fluides. Compte tenu de l'étendue du sujet, seuls quelques travaux que nous jugeons pertinents sont cités.

Suh et White [12] étudient en 1995 le comportement rhéologique d'un mélange de talc dans un thermoplastique et plus particulièrement l'orientation des particules sous l'action de différents types de flux. Les résultats sont donnés en termes de facteur d'orientation. Ils évaluent ainsi l'influence de différents paramètres (concentration en particules, tailles des particules, type de flux, taux de déformation...) sur l'orientation.

En 1996, Iso et al. [13] travaillent sur des suspensions de fibres dans le domaine semi dilué. Les résultats publiés concernent des fluides faiblement ou fortement viscoélastiques. Dans le cas de fortes concentrations en fibres, la plupart des fibres sont orientées selon l'axe du flux pour un cisaillement simple. La fonction de distribution en orientation est identique à celle rencontrée pour un fluide newtonien.

Avec la diminution de la concentration en fibres, les auteurs observent une augmentation du désordre dans l'orientation des fibres. Dans le cas de fluides fortement viscoélastiques [14], la distribution en orientation est très peu sensible à la concentration en fibres. Dans le cas d'une suspension contenant une fibre seule, des orientations privilégiées sont observées à des angles donnés par rapport à la direction d'écoulement.

### 3-1-2 Les méthodes d'orientation des fibres sous champs

#### a- Différents travaux effectués dans le domaine

La majorité des méthodes d'orientation de fibres courtes sous champs électromagnétiques ne sont applicables qu'à des fibres métalliques. Par ordre chronologique on peut citer:

En 1973, Coran et Al. [15] ont fait breveter un procédé de fabrication de matériaux composites comprenant des éléments discontinus ordonnés (fibres de fer, acier...) à l'aide d'un champ magnétique statique. Les fibres sont orientées dans une direction précise à l'aide d'un ensemble d'aimants permanents puis, à l'aide d'une surface adhésive, sont transférées dans la matrice. L'adhésion de cette surface doit donc être supérieure à la force des aimants et inférieure à l'adhésion de la matrice. L'orientation des fibres peut être modifiée en adaptant la configuration des aimants. On peut ainsi développer un matériau laminaire en alternant des aimants de polarités opposées. Par cette méthode 50 à 250 fibres par  $\text{cm}^2$  peuvent être orientées pour un rapport longueur/diamètre des fibres compris entre 10 et 300.

La société Institute for Innovationsteknik [16] (1975) a quant à elle réalisé un procédé pour renforcer du béton à l'aide de fibres de manière à éviter la propagation de microfissures. Les fibres sont en acier à une concentration de 1 à 3%. Pour des taux supérieurs, les fibres s'agglomèrent en amas. Les meilleurs résultats sont obtenus pour un facteur de forme des fibres égal à 100. Afin d'obtenir un renforcement efficace, les fibres sont alignées dans la direction de l'effort à l'aide d'un champ magnétique. Les fibres ferromagnétiques (dont la taille est de l'ordre du mm) se placent selon les lignes de champ en 15 secondes.

Tassone et Al. [17] ont mis au point en 1975 une technique pour renforcer une couche de matériau polymère à l'aide de particules métalliques. Celles - ci sont insérées de façon aléatoire dans le matériau en phase liquide, puis orientées à l'aide d'un champ électrostatique avant que le polymère ne durcisse. Le champ électrostatique a une double fonction, il oriente les particules de renforcement et fournit la chaleur nécessaire au durcissement du polymère (ce dernier point nous semble discutable).

En 1985, Giacomel [18] a obtenu un brevet pour un procédé l'élaboration de matériaux contenant des particules métalliques magnétiques orientées. La viscosité de la



matrice doit dans ce cas être suffisamment faible pour permettre aux particules de s'orienter sous l'action du champ magnétique appliqué. La méthode n'est applicable qu'avec des inclusions sensibles au champ magnétique. Si l'on excepte le cas des substances magnétiques naturellement (Fer, Nickel...), il faut appliquer un revêtement sur les matériaux isotropes utilisés.

L'orientation des particules se fait en suspension, après quoi la matrice est solidifiée en conservant l'orientation sélective des particules.

Meek et Al. [19] [1986] ont mis en œuvre une méthode de préparation d'une céramique renforcée de fibres pour améliorer la résistance à la rupture. Un mélange précurseur de la céramique comprenant, une matière vitreuse, un agent de couplage et des fibres est soumis à des micro - ondes. Les fibres s'orientent dans la matrice céramique.

En 1987 Costello [20] réalise un dispositif de moulage pour composites contenant des fibres de carbone dont la surface a été métallisée afin d'obtenir une meilleure résistance à la charge et une susceptibilité magnétique suffisamment anisotrope. Ces fibres de carbone métallisées, après avoir été insérées dans une matrice liquide, sont soumises à un champ électrique qui induit une polarité. Un champ magnétique oriente les fibres parallèlement à ses lignes de force.

Sous toutes réserves, on peut exprimer quelques doutes quand à la faisabilité de certaines de ces méthodes:

- l'adaptation de méthodes provenant du système d'orientation des cristaux liquides (qui sont de bons isolants) doit être assez difficile en présence de particules conductrices qui risquent de provoquer des décharges dans le système soumis à des tensions élevées;
- la rédaction des brevets (ou leur traduction) ne définit pas clairement les caractéristiques et le type des champs utilisés. Or l'interaction avec la matière d'un champ magnétique est très différente de celle d'un champ électrique;
- les phénomènes d'induction dans le cas de champs alternatifs sont rarement traités en tenant compte de la dimension des particules.

### b- Différentes théories pour expliquer l'action des champs

La méthode développée dans le laboratoire consiste en l'action simultanée de deux champs, un champ statique créé par un électro - aimant et un champ alternatif haute fréquence.

L'étude de l'action d'un champ magnétique ou électrique sur des particules métalliques a été largement étudiée. Takashima [21] [1996] analyse l'influence d'un champ magnétique sur le mouvement d'un liquide contenant des particules ferromagnétiques dans le but de déduire l'orientation finale des particules dans le matériau. Néanmoins, la susceptibilité magnétique de tels systèmes est largement supérieure à celle de nos suspensions.

Ziabicki et Jarecki [22] [1994] ont développé une théorie afin de comprendre et/ou simuler le mouvement de particules dans un flux uniaxial (en élongation, compression...) sous l'action simultanée d'un champ magnétique.

Ils proposent [22] des expressions de la fonction de distribution  $\Psi(\theta)$  permettant une analyse non linéaire de l'orientation. Ils observent que sous certaines conditions, les particules s'orientent indépendamment des mouvements du liquide. La fonction de distribution à l'équilibre est donnée par:

$$\psi_{eq}(\theta) = \text{const} * \exp\left[-\frac{3}{4}(q^*R / D_{\theta\theta}) \sin^2 \theta\right] * \exp\left\{-\left[U_0 + c \int \psi_{eq}(\theta)\beta(\theta,\theta')d\theta'\right] / kT\right\}$$

(3-1)

- avec
- $D_{\theta\theta}$ : le coefficient de diffusion en rotation;
  - $U_0$ : l'énergie d'interaction (liée à l'intégrale du couple magnétique entre deux orientations);
  - $R$ : le facteur de forme hydrodynamique;
  - $q^*$ : valeur intervenant dans le gradient de vitesse;
  - $\beta(\theta,\theta')$ : expansion en polynômes de Legendre de l'énergie d'interaction entre deux particules uniaxiales;
  - $c$ : la concentration en particules.

Cette expression a été reformulée par ces auteurs en 1997 [23] sous la forme



$$\psi_{eq}(\theta) = \text{const} * \exp(B * x + C * x^2) \quad (3-2)$$

où B et C sont des paramètres déterminés à partir des équations de consistance.

Ce traitement de l'orientation nécessite l'application des équations hydrodynamiques et donc la présence d'un système homogène. Les forces en présence sont le mouvement brownien des particules (lié à la diffusion), le cisaillement et le couple lié au champs. Dans notre cas, les particules sont trop grandes pour permettre un mouvement brownien significatif et de plus les matériaux composites ne sont pas homogènes.

Si de nombreuses études portent sur l'orientation de particules magnétiques sous champ statique, aucune ne fait intervenir l'influence d'un champ alternatif pour orienter des particules non magnétiques. Les études portant sur l'utilisation des champs alternatifs haute fréquence concernent surtout leur capacité à chauffer un matériau.

Fink et Al. [24] ont abordé les mécanismes de génération et de distribution de la chaleur dans un composite soumis à un champ alternatif. Ce modèle peut être intéressant pour étudier l'absorption du champ haute fréquence dans la profondeur de l'échantillon. Le modèle proposé prédit l'intensité et la distribution de la chaleur à travers l'épaisseur du matériau. Le composite est représenté comme une série de plans conducteurs parallèles représentant les fibres de carbone. Un paramètre de chauffage effectif  $\gamma$  établit la distribution de chaleur à travers l'épaisseur du matériau:

$$\gamma_{total} = \sum_{a=0}^{m-1} \left( \sum_{i=a}^{n+a-1} \frac{1}{h_0 + i * d^*} \right) \quad (3-3)$$

- $h_0$ : distance entre deux plans de fibres de même orientation;
- $d^*$ : facteur dépendant de la fraction volumique des fibres dans un "pli" et de leur géométrie;
- m et n: nombre de couches de fibres dans le pli du haut et du bas dans l'hypothèse d'un laminé formé de deux plis.

Les facteurs d'orientation mesurés sur les échantillons fabriqués sous champs ne varient que très peu en fonction de la profondeur de l'échantillon. On en déduit que la situation d'un composite à fibres courtes est trop différente de celle décrite par Fink et al. pour que leur méthode puisse y être appliquée.

### **3-2 Paramètres d'élaboration d'un matériau composite par moulage**

#### **3-2-1 Préparation des éprouvettes et influence de la géométrie du moule**

Des éprouvettes sont réalisées à partir de compositions avec des taux de fibres de 5, 10; 15, 20 et 25 %. Le mélange résine + fibres + durcisseur est injecté dans deux types de moules en silicone: des moules carrés destinés à l'analyse de l'orientation et des moules rectangulaires pour les éprouvettes de traction.

Pour le moule carré le point d'injection est au centre et pour le moule rectangulaire, il est à 5 mm du bord le long du petit côté (figure 3-3). Les éprouvettes sont recuites après deux heures de repos selon les conditions préconisées par le fabricant (2 heures à 80°C pour la résine ARC 40/32).

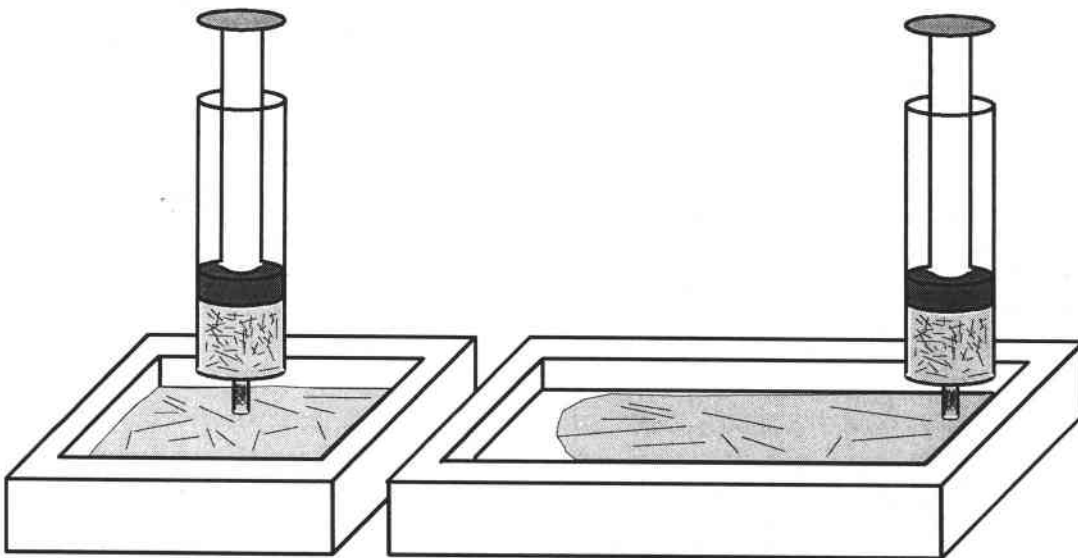


Figure 3-3 : Modes d'injection des éprouvettes

Lors de l'injection dans le moule rectangulaire, on peut négliger l'effet de l'embout de la seringue. Pour que celui ci induise une orientation des fibres il faudrait qu'il soit beaucoup

plus long. En théorie, lorsque le mélange va s'écouler dans le moule, les frottements contre les parois vont provoquer une orientation des fibres. Il se forme une zone de peau dans le composite. L'injection dans le moule carré est faite de sorte à minimiser l'influence de l'écoulement compte tenu de sa petite taille et de la position d'injection au centre du moule. Il n'apparaît aucune direction d'écoulement privilégiée (figure 3-4). Dans le cas des échantillons non traités, aucune différence d'orientation n'est observée entre les deux types de moules.

Pour déterminer le facteur d'orientation du matériau, l'échantillon est usiné sur toutes ses faces de manière équivalente puis poli. Il en résulte la disparition d'une partie de la couche de peau dont l'orientation est généralement plus prononcée. Les facteurs d'orientation calculés ont donc tendance à sous estimer l'orientation moyenne. D'un autre côté, l'orientation dans la partie centrale du matériau est mieux évaluée (prise en compte de l'orientation à l'intérieur du matériau) ce qui sera un point important pour vérifier l'efficacité du dispositif d'orientation.

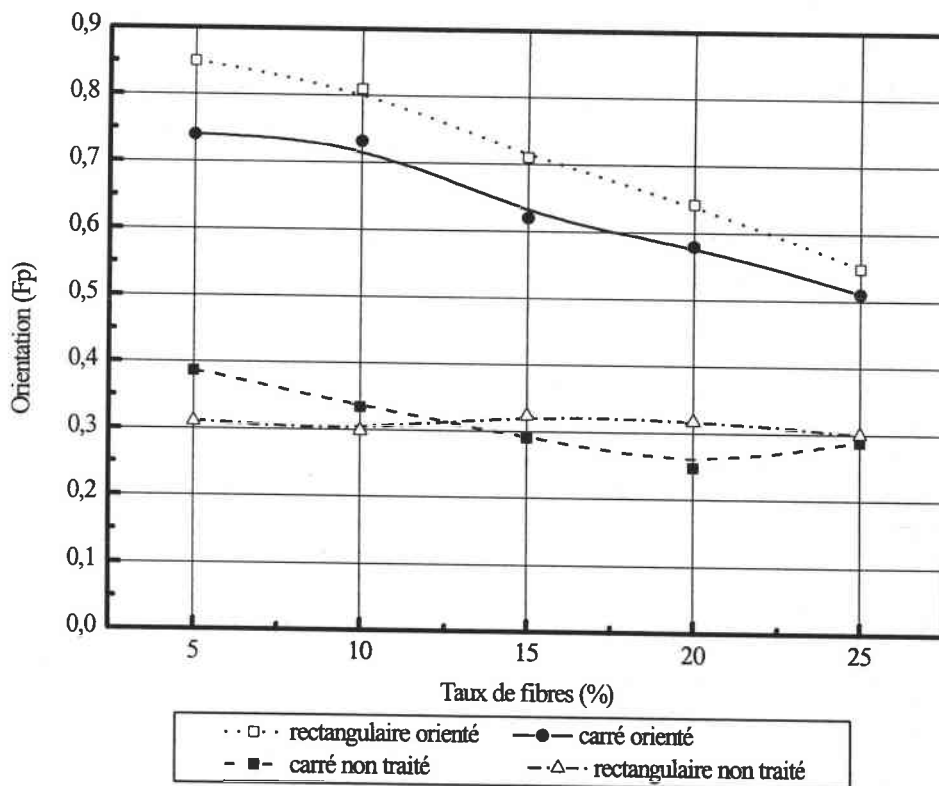


Figure 3-4: Influence de la géométrie du moule sur le facteur d'orientation  
(T300 calibrées, HY5052,  $t_{or} = 20$  mn)

La comparaison d'un moule carré et d'un moule rectangulaire met donc en évidence l'effet de l'orientation par écoulement anisotrope. Dans un échantillon rectangulaire, les

interactions fibre-fibre et fibre-paroi induisent une orientation dans le sens de l'injection. Cette orientation est limitée par les phénomènes de convection dans le mélange lorsque la viscosité est faible (taux en fibres inférieur à 0.15).

Un échantillon rectangulaire traité sous champs aura toujours un facteur d'orientation supérieur d'au moins 0.1 à celui d'un échantillon carré et ce quel que soit le taux de fibres. Dans le cas d'un matériau aléatoire cette observation n'est plus vraie, les deux courbes ont une évolution très proche. Pour des concentrations en fibres inférieures à 15%, les convections dans le mélange sont plus importantes dans le moule rectangulaire d'où une orientation plus faible.

### **3-2-2 Influence de la viscosité du mélange résine - fibres**

#### **a- Techniques expérimentales**

Les mesures de rhéologie sont effectuées à l'aide d'un rhéomètre **Rhéotest 2** [25]. Elles sont effectuées à l'aide d'une cellule de type **couette** (référence H/H) et **cône plan** (référence K2 de 24 mm de diamètre):

- pour différents gradients;
- en se plaçant sur le plateau newtonien.

Le rhéomètre étant thermostaté, cela permet d'évaluer l'influence de la température sur la viscosité du mélange fibre - résine.

#### **b- Influence de la vitesse de cisaillement sur la viscosité du mélange**

La résine époxyde présente un caractère newtonien. Dans une échelle logarithmique, l'évolution de la viscosité en fonction du cisaillement peut être décomposée en trois domaines:

- (a) le plateau newtonien;
- (b) le domaine pseudo - plastique;
- (c) un second plateau newtonien.

Cette partition sera de plus en plus marquée avec l'augmentation de la concentration en fibres (figure 3-5).

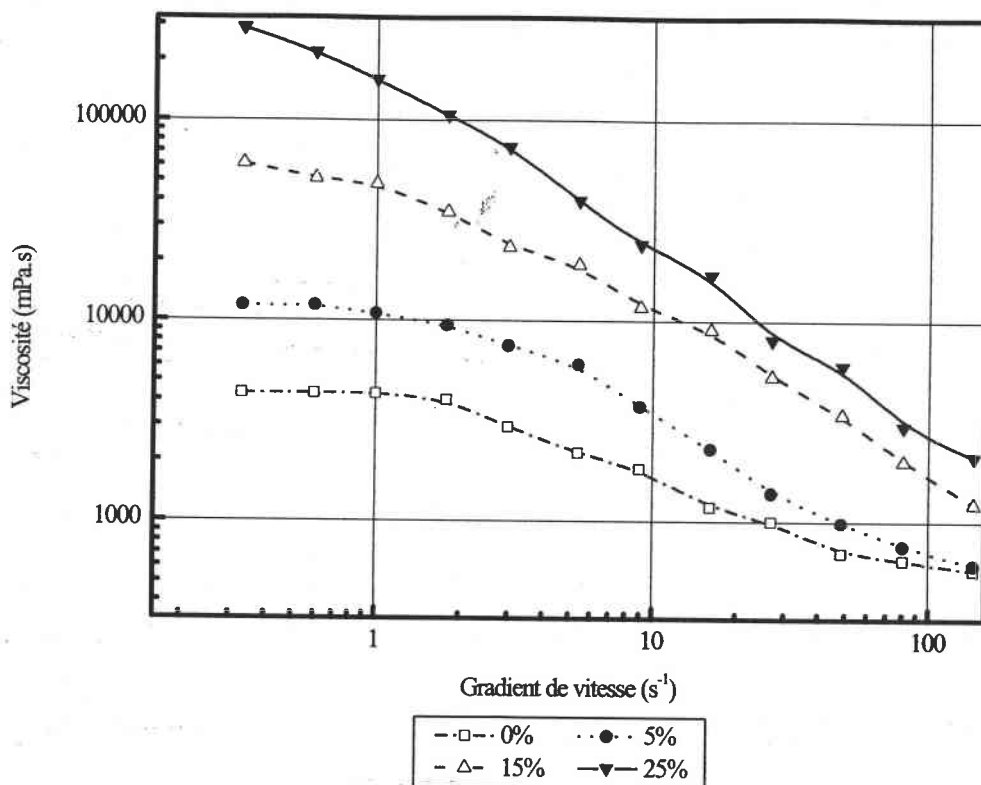


Figure 3-5: Viscosité en fonction du gradient de vitesse appliqué pour différentes concentrations en fibres T300mld dans la résine ARC 40/32

### c- Influence de la concentration en fibres sur la viscosité du mélange

A 25°C, la viscosité augmente fortement à partir d'une concentration en fibres de 20%. Globalement, on pourra définir trois domaines de concentration:

- les concentrations inférieures à 6% (domaine dilué);
- les concentrations comprises entre 7 et 19% (domaine semi dilué);
- les concentrations supérieures à 20% (domaine concentré).

Dans le domaine dilué, les interactions fibre - fibre sont inexistantes. Il en résulte une viscosité peu différente de celle de la résine. Dans le second domaine, les interactions sont encore suffisamment faibles pour autoriser les mouvements individuels des fibres. Dans le domaine concentré, les interactions entre fibres sont importantes et ne laissent quasiment plus aucune liberté de mouvement aux fibres.

d- Influence de la température sur la viscosité du mélange

La viscosité est d'une manière générale une fonction exponentielle de la température. Son évolution est donnée dans le domaine semi dilué par l'équation d'Arrhénius [26].

$$\eta = B * \exp(E_{\eta} / RT) \quad (3-2-2-4)$$

- $E_{\eta}$  est l'énergie d'activation du flux visqueux;
- B une constante;
- R la constante des gaz parfaits;
- T la température.

Si l'on observe cette évolution en fonction de la charge en fibres, à partir de 50°C une forte baisse de la viscosité est observée dans le cas des fibres T300mld (figure 3-6). Cette diminution est très nette dans le domaine concentré.

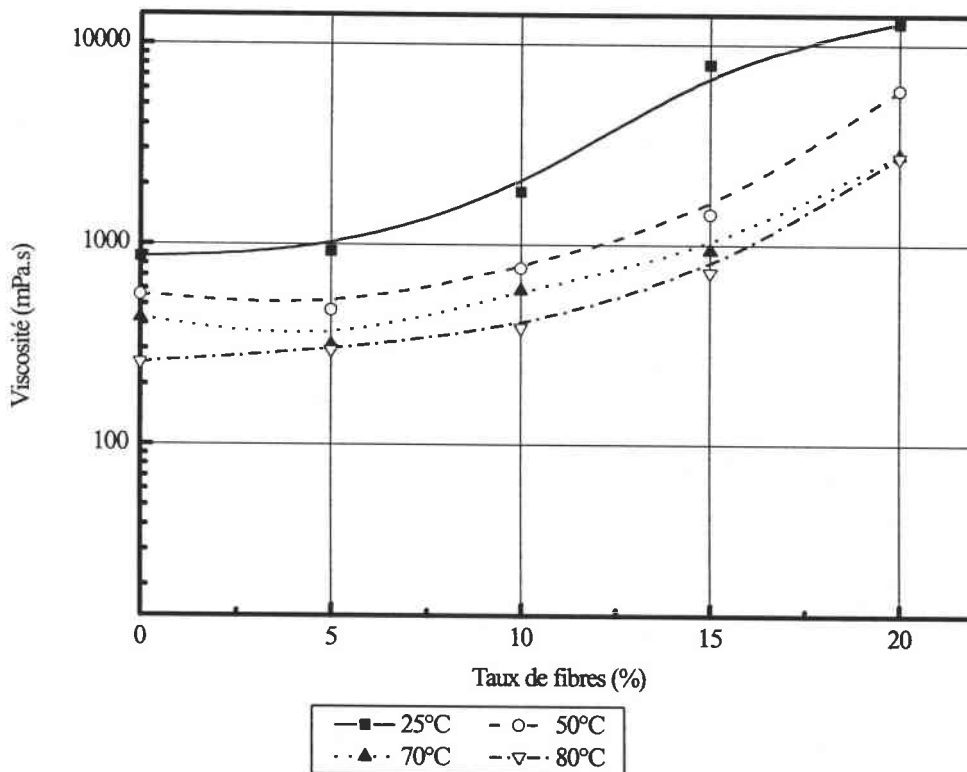


Figure 3-6: Influence de la température sur la viscosité du mélange pour différentes concentrations en fibres (gradient =  $8.1 \text{ s}^{-1}$ , fibres T300mld, glycérol)



e- Influence des caractéristiques des fibres sur la viscosité du mélange(i) - Influence du rapport de forme sur la viscosité

Comme on pouvait s'y attendre, une augmentation du rapport de forme entraîne une augmentation de la viscosité (figure 3-7). Cela s'explique par l'augmentation des interactions fibre-fibre du fait de leur longueur plus grande. A partir de 500 $\mu\text{m}$ , de véritables pelotes de fibres peuvent être observées d'où un mouillage des fibres plus difficile.

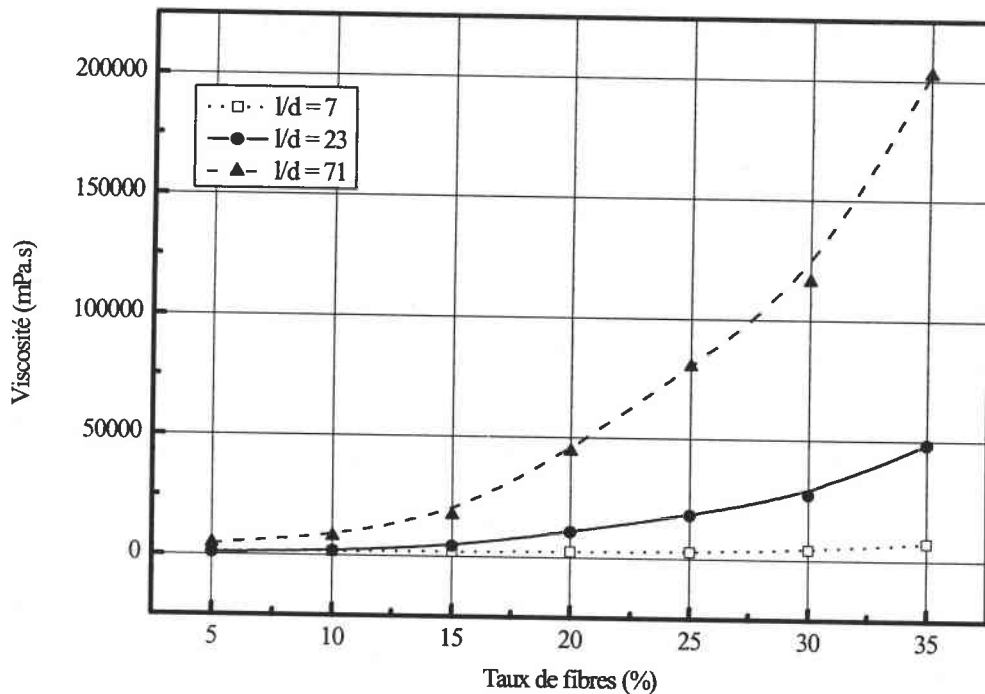


Figure 3-7: Evolution de la viscosité en fonction de la concentration en fibres pour différents rapports de forme dans le glycérol (gradient = 9 s<sup>-1</sup>)

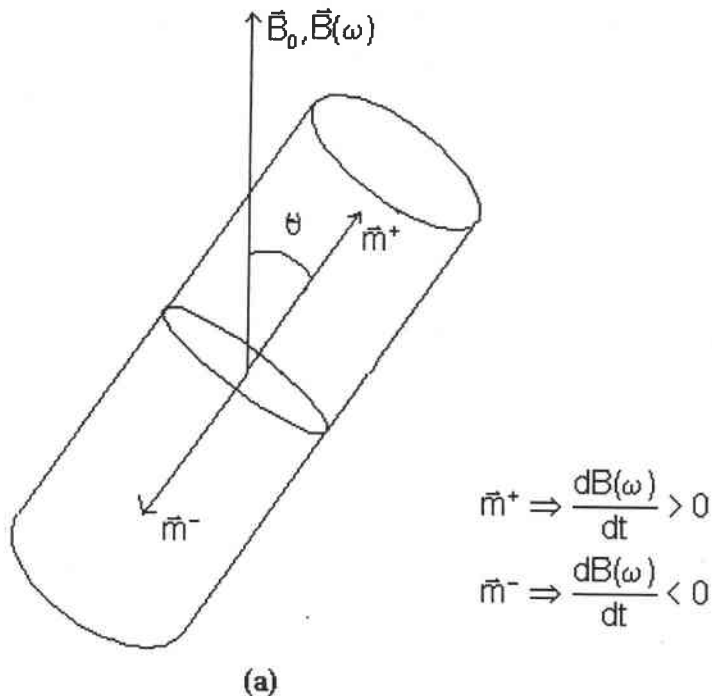
(ii) - Influence de l'ensimage sur la viscosité

Une augmentation conséquente de la viscosité est observée dans le cas de fibres ensimées dans une résine époxyde. Ceci est dû aux groupements chimiques constituant l'ensimage. Ceux ci ayant pour but d'améliorer la cohésion fibre matrice, il s'ensuit une diminution de la fluidité du mélange (Annexe 2).

### 3-3 Elaboration d'un matériau composites sous champs magnétiques

#### 3-3-1 Présentation théorique de la méthode développée

Le champ haute fréquence  $\vec{B}_\omega$  crée des courants de Foucault dans les fibres (a). Il en résulte un moment magnétique  $\vec{m}(t)$ . En appliquant un champ magnétique statique  $B_0$ , colinéaire à  $\vec{B}_\omega$ , on observe une orientation des fibres selon l'axe des champs.



Afin de traiter les phénomènes d'induction il est utile de rappeler que les particules conductrices sont très petites par rapport à la longueur d'onde du champ oscillant. On trouve ainsi un rapport entre la dimension des fibres (170  $\mu\text{m}$ ) et la longueur d'onde du champ oscillant (30 m) similaire au rapport entre la taille des molécules et la longueur d'onde de la lumière visible. Comme pour un matériau optiquement transparent, on s'attend à une faible absorption du champ oscillant par le matériau composite. Sur des échantillons de taille allant jusqu'à 20mm de diamètre, pour une longueur de 25 mm, aucune variation de l'orientation n'est observée sur le volume du matériau. Pourtant, si on fait varier la puissance du champ oscillant créé par le générateur, une orientation différente des fibres est observée.

Des travaux préalables ont montré qu'il est possible d'orienter une unique fibre de carbone dans du glycérol. Par conséquent, une explication de l'orientation basée sur des boucles de courants à travers plusieurs fibres est impossible. Pour vérifier si l'orientation est liée à

l'anisotropie de la susceptibilité magnétique du matériau, l'expérience a été répétée en utilisant un fil de cuivre (matériau parfaitement isotrope). Une orientation du fil de cuivre a été observée ce qui exclut une explication basée sur l'anisotropie de la susceptibilité magnétique seule.

Les premières tentatives d'explication de ce phénomène d'orientation [27] ne prennent pas en compte l'aspect oscillant du moment magnétique. Ces oscillations, à la fréquence du générateur HF (typiquement 1 MHz) sont très rapides par rapport à la fréquence du mouvement angulaire ( $\omega_{\text{fibre}} \cong 0.1 \text{ Hz}$ ) de la fibre. La question qui se pose alors est pourquoi le moment magnétique oscillant dans un champ statique  $\vec{B}$  crée-t-il, en moyenne, un couple  $\vec{\Gamma}_{\text{moyen}}$  qui provoque l'orientation de la fibre? Ainsi, à tout instant dans le procédé d'orientation, on peut écrire:

$$\vec{\Gamma}(t) = \vec{m}(t) \wedge \vec{B} \quad (3-4)$$

en sachant que  $\vec{m}(t)$  change de signe et suit  $\vec{B}_0$ .

Une hypothèse à envisager est que le moment magnétique induit est réduit de manière monotone lorsque la fibre tourne vers la direction du champ statique. Dans un cycle de variation du champ HF, le mouvement "aller" sera un peu plus important que le mouvement "retour". Cette approche n'est pas compatible avec nos observations qui montrent que le mouvement de rotation des fibres est plus rapide pour les angles intermédiaires que pour une fibre quasiment perpendiculaire à la direction du champ statique<sup>(1)</sup>.

Dans la recherche d'une autre justification, on examine la symétrie du mouvement de la fibre pour une inversion du moment magnétique. Sachant que le moment magnétique  $\vec{m}(t, \theta) = \vec{m}_0(\theta) \cdot \sin(\omega \cdot t + \varphi)$  n'est pas connu, on se contente d'analyser l'équation différentielle approximée du mouvement de rotation d'une fibre seule soumise à nos conditions d'orientation:

$$\frac{d^2\theta}{dt^2} + A \cdot \frac{d\theta}{dt} - B \cdot \sin(\theta) = 0 \quad (3-5)$$

<sup>(1)</sup> Les seules forces s'opposant à l'orientation des fibres sont d'origine hydrodynamiques vu la faible inertie et la faible vitesse de rotation des fibres. Le liquide étant isotrope, ces forces ne dépendent pas de l'angle d'orientation et sont probablement proportionnelles à la vitesse de rotation.

La constante A tient compte du frottement visqueux et de l'inertie de la particule et B prend en compte le moment magnétique induit et l'inertie de la particule.

Le moment  $\vec{m}(\theta, t)$  est approximé par deux moments  $m^+$  et  $m^-$  constants et opposés. Ceci change le signe de la constante B. L'équation du mouvement est résolue numériquement en prenant successivement comme conditions initiales l'angle et la vitesse calculés à l'itération précédente. Cinquante "aller-retour" de la fibre correspondent à 100 itérations. La fréquence des oscillations du moment magnétique étant d'environ 1 MHz, on choisit un temps d'intégration numérique dans l'équation (3-5) de 0.5  $\mu$ s. Cette démarche se justifie par la très faible inertie de la fibre et par le fort frottement visqueux par rapport au couple appliqué à la fibre.

Le tableau 3-1 donne la position et la vitesse atteintes par une fibre de moments successifs  $m^+$  (sens "aller") et  $m^-$  (sens "retour") après 100 itérations. On obtient ainsi une valeur de l'avance par rapport à la position de départ.

Orientation initiale	$\cong \pi/3$	$\cong \pi/4$	$\cong \pi/6$	$\cong \pi/8$
	1.047197551000000	0.785398163400000	0.523598775600000	0.392699081700000
Position après 100 itérations	1.047197541987341	0.7853981557741881	0.5235987701512397	0.3926990776012131
avance après 50 cycles (rad.)	$1 \cdot 10^{-8}$	$7.7 \cdot 10^{-9}$	$5.5 \cdot 10^{-9}$	$4.1 \cdot 10^{-9}$
Vitesse "aller"	-0.02285864935217	-0.0186640096944720	-0.0131974480324338	-0.0101008898740086
Vitesse "retour"	+0.02285864938963	+0.018664009738040	+0.013197448070845	+0.010100889904407

Tableau 3-1: Positions et vitesses d'une fibre soumise au champs magnétiques pour différentes orientations de départ (unités en radians et radians.s<sup>-1</sup>)

Expérimentalement, une fibre de carbone de  $10^{-3}$  m de longueur pour  $7 \cdot 10^{-6}$  m de diamètre met environ 100 s pour tourner d'un angle de  $\pi/4$ . Ce temps correspond à environ  $10^8$  mouvements "allers-retours". Pour les 100 itérations, on doit trouver une variation angulaire de  $40 \cdot 10^{-8}$

radians. Si l'on se reporte au tableau 3-1, une variation angulaire de  $1.10^{-8}$  radians est trouvée avec des coefficients A et B égaux à:

$$A= 10^7; B= 267530$$

Même si les constantes A et B ne peuvent être calculées avec précision et de manière indépendante cette simulation permet de résoudre une controverse concernant l'explication du phénomène d'orientation. Elle montre que les effets secondaires (la variation du couple magnétique avec l'angle) peuvent provoquer un mouvement net qui conduit à l'orientation des fibres.

### **3-3-2 Présentation du dispositif expérimental utilisé**

Le dispositif expérimental est constitué :

- 1) d'un électroaimant produisant un champ d'induction magnétique d'intensité maximale de 1,3 teslas;
- 2) d'un générateur haute fréquence de 5 kW fournissant un champ de quelques mT entre 0.8 et 4.2 Mhz (figure 3-8).

Des plaques de protection en aluminium sont disposées sur chacun des mors de l'électroaimant, chacun des mors étant refroidi par un circuit d'eau. Les moules sont insérés dans la bobine Haute Fréquence puis positionnés entre les mors du champ statique.

En faisant varier l'écartement entre les mors, l'intensité du champ statique peut être modifiée et adaptée aux besoins (figure 3-9).

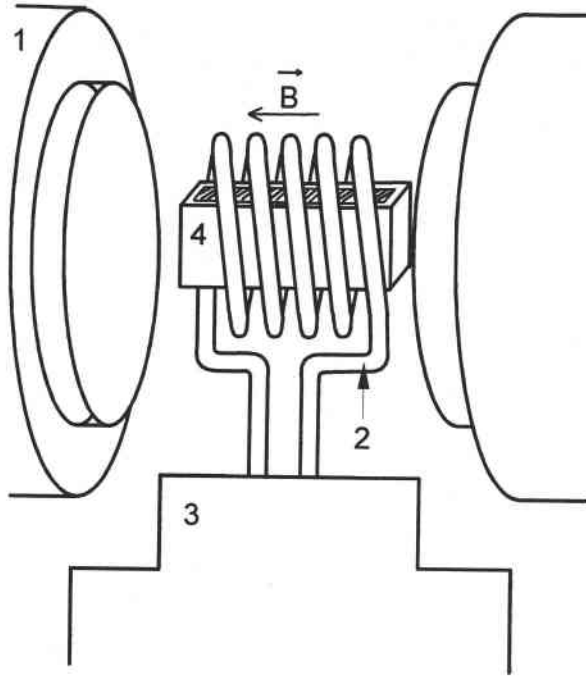


Figure. 3-8 : Dispositif expérimental : 1) électroaimant, 2-3) bobine et générateur haute fréquence, 4) moule

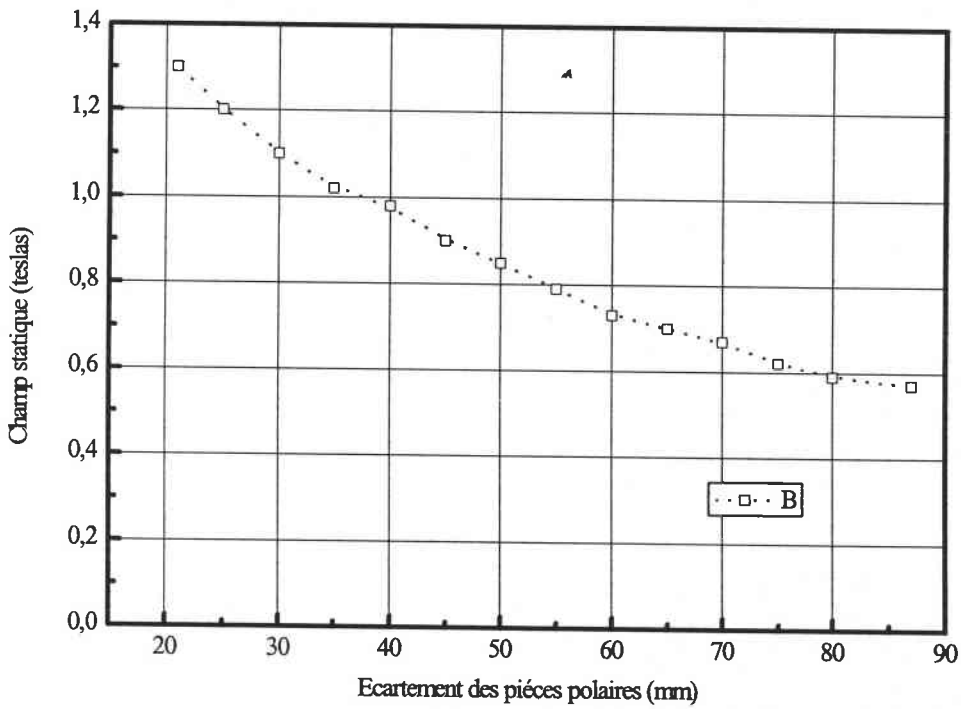


Figure 3-9: Intensité du champ magnétique statique (teslas) en fonction de l'écartement entre les mors (mm)

L'écartement de travail choisi est de 70 mm compte tenu de la taille du moule rectangulaire (50 mm). Dans ces conditions, le champ statique est bien homogène (figure 3-10 et 3-11). Dans le cas du moule carré, cette distance peut être abaissée à 50mm. En dessous de cette distance il n'est plus possible de travailler correctement car la chaleur dégagée par le montage est telle que la protection des plaques en aluminium devient insuffisante. Le moule commence à brûler et surtout la résine époxyde se dénature.

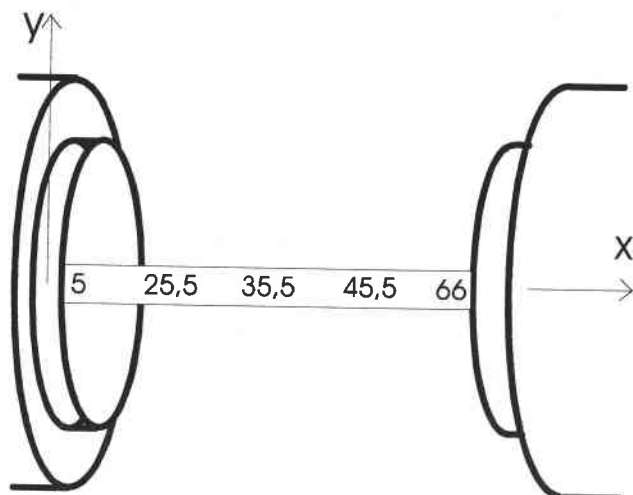


Figure 3-10: Position des points de mesure du champ par rapport au mors de gauche (Distance des points 1 à 5 donnée en mm)

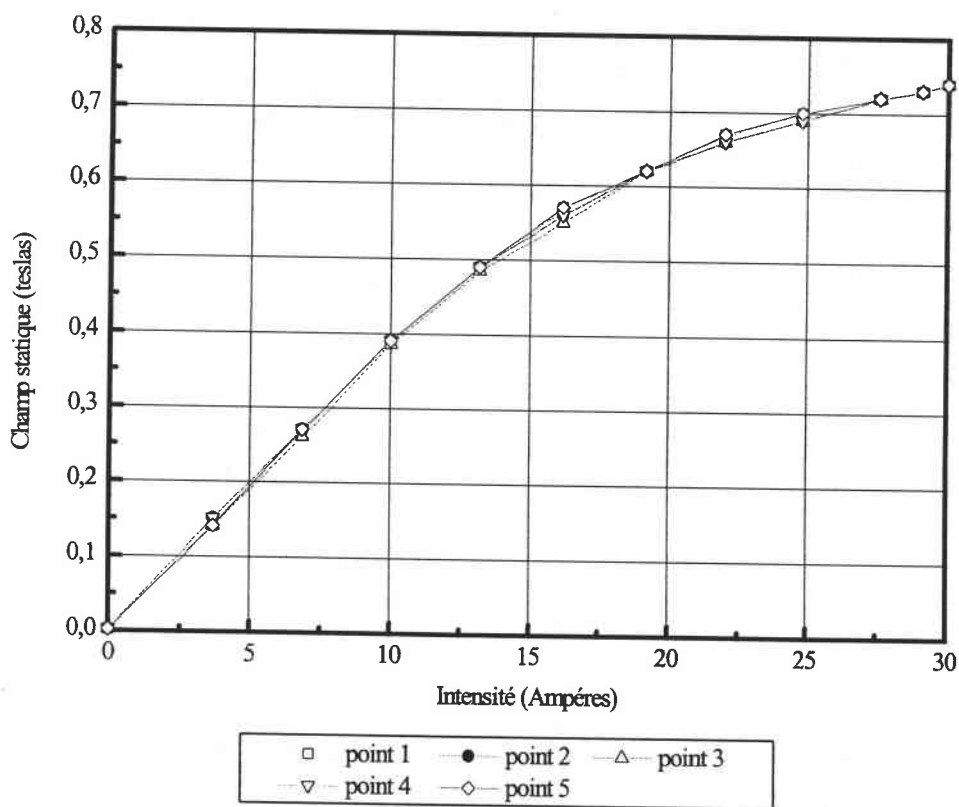


Figure 3-11: Homogénéité du champ magnétique statique en fonction de l'intensité appliquée pour un écart de travail de 70mm entre les mors



### 3-3-3 Résultats et étude des paramètres influençant l'orientation des fibres

Dans ce qui suit, l'influence de certains paramètres sur l'orientation des fibres est détaillée en utilisant comme support le facteur d'orientation planaire  $F_p$ . Ce dernier permettra une évaluation quantitative de l'importance des paramètres étudiés.

#### a - L'intensité du champ haute fréquence

Les indications relatives au champ haute fréquence sont celles données par les cadrans du générateur.

L'orientation des fibres de carbone dans le matériau composite augmente avec l'intensité du champ haute fréquence ainsi qu'avec le temps d'application de celui-ci. Cette évolution peut être observée en fonction de la quantité de fibres de carbone T300mld (figure 3-12).

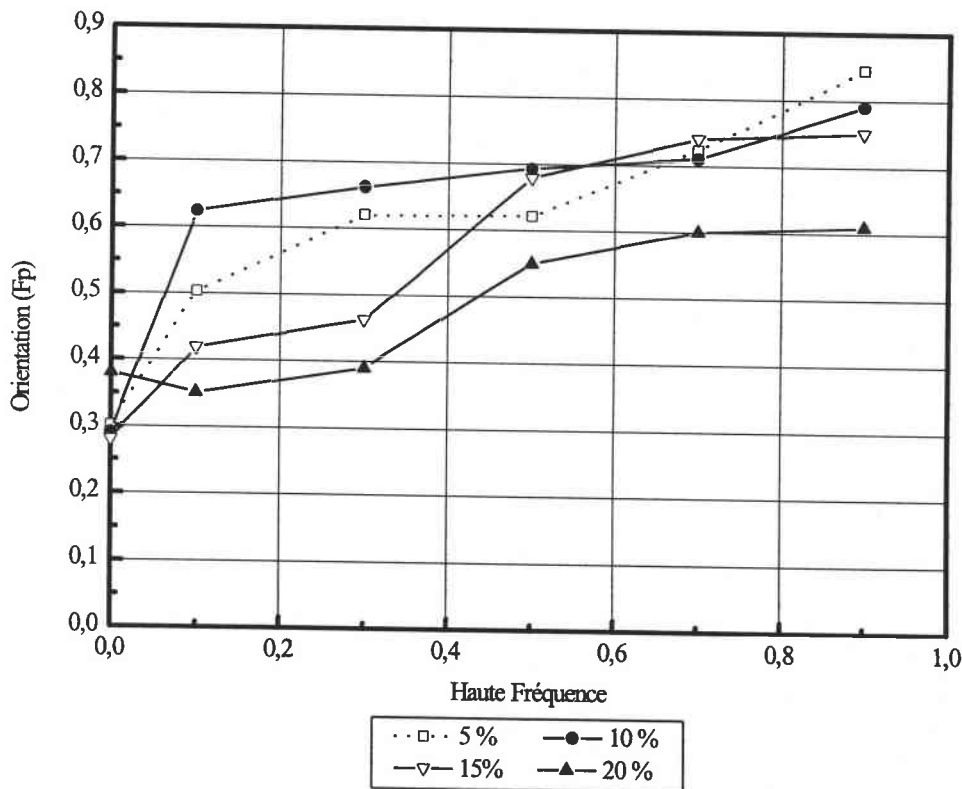


figure 3-12: Orientation en fonction de l'intensité du champ haute fréquence pour différents taux de fibres ( $B = 0.7$  teslas,  $t_{or} = 20$  mn, fibres T300mld, résine ARC 40/32)

Les incertitudes sur le facteur d'orientation ne permettent pas de déduire une loi de croissance. Néanmoins, on peut supposer que l'évolution de l'orientation avec l'intensité du

champ haute fréquence est linéaire. Globalement, la pente de cette droite imaginaire décroît avec l'augmentation de la concentration en fibres.

On note cependant le comportement particulier pour une concentration de 10% et pour les faibles intensités de champ HF ( $F_p = 0.63$ ). Cette orientation élevée provient probablement de l'injection dans le moule. Ce phénomène a été observé à de nombreuses reprises.

### b- L'intensité du champ statique

Pour des intensités du champ magnétique statique inférieures à 0.55 teslas, même avec un champ haute fréquence de 0.9, il est impossible d'orienter un échantillon (figure 3-13). Au delà de 0.55 teslas, on note un pic d'orientation pour environ 0,75 teslas après quoi,  $F_p$  diminue. Cette baisse s'explique par l'augmentation de la température liée au rapprochement des mors de l'aimant. L'augmentation de l'agitation thermique résultant perturbe l'orientation des fibres.

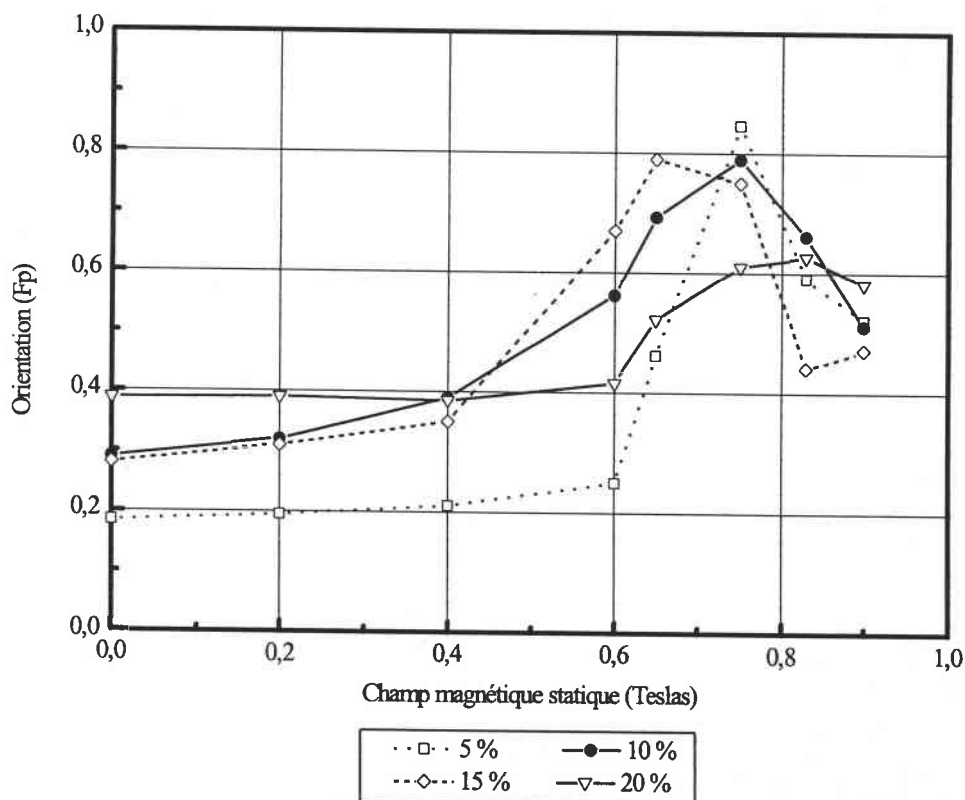


Figure 3-13: Orientation en fonction du champ statique pour différentes concentrations en fibres (fibres T300mld, résine ARC 40/32, HF = 0.9 et  $t_{or} = 20$  mn)

On remarquera que l'effet d'orientation par injection est très visible pour de faibles intensités du champ. Lorsque la concentration en fibres augmente, celles-ci ont tendance à s'orienter mutuellement dans le sens de l'injection du fait des interactions mécaniques entre elles.

### c- Influence de la température

Lors de la fabrication d'un échantillon, la température s'élève de façon assez importante. Deux phénomènes sont à retenir:

(1) le premier lié aux caractéristiques du montage. Pour augmenter l'intensité du champ statique, il faut resserrer les mors de l'électroaimant. Ceux-ci se rapprochant de la bobine haute fréquence s'échauffent rapidement malgré la mise en place des plaques de protection en aluminium.

(2) le second est dû à la nature des fibres utilisées et plus particulièrement à leur résistivité volumique (échauffement par effet Joule).

Analyser l'influence de la température sur l'orientation est une opération complexe car elle fait intervenir des évolutions antagonistes. En effet, si une augmentation de la température diminue la viscosité du mélange, elle implique simultanément une diminution de la durée d'utilisation de la résine. Cette limitation dans le temps pose des problèmes car il est nécessaire de soumettre le mélange aux différents champs pendant une durée minimale si l'on veut obtenir une bonne orientation des fibres.

Afin d'appréhender efficacement l'influence de la température, deux types de fibres sont utilisées:

(a) des fibres **PAN T300mld**;

(b) des fibres à base de **braie P55**.

La résistivité volumique des premières est de  $18.10^{-6} \Omega.m$  tandis que celle des P55 n'est que de  $8.5.10^{-6} \Omega.m$ .

L'échauffement des fibres perturbe l'orientation en induisant une convection thermique. Le dégagement de chaleur produit par effet joule est nettement plus important dans le cas des fibres T300 mld (figure 3-14) que pour les fibres P55 (figure 3-15). Cela implique

que dans le cas des fibres T300 mld la durée d'utilisation de la résine diminuera fortement avec l'augmentation du taux de fibres.

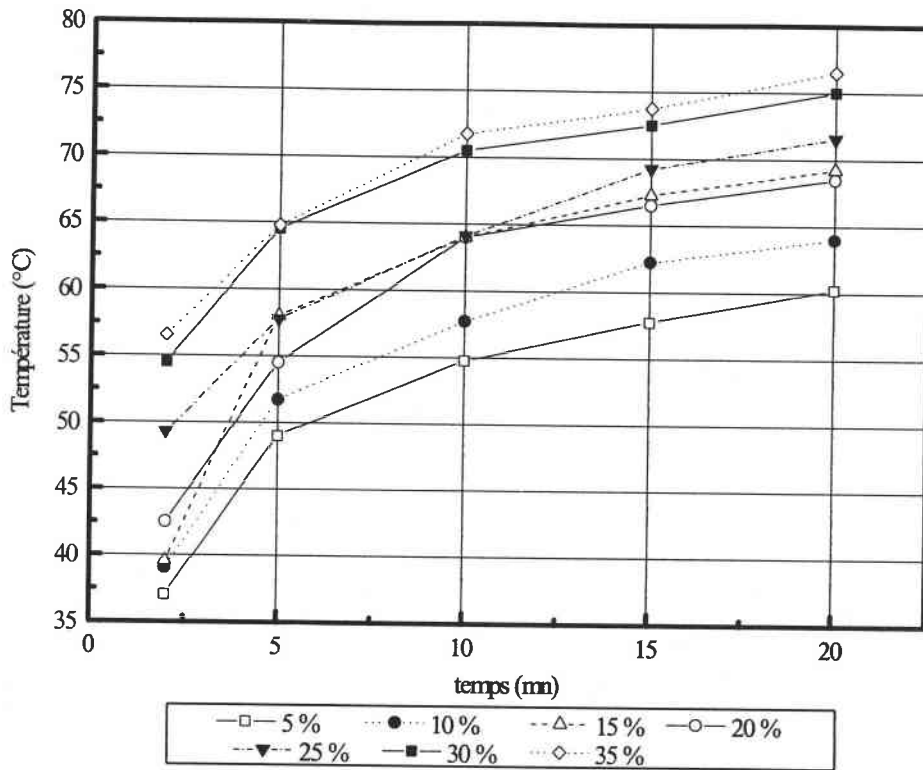


Figure 3-14: Evolution de la température en fonction du temps (fibres T300 mld)

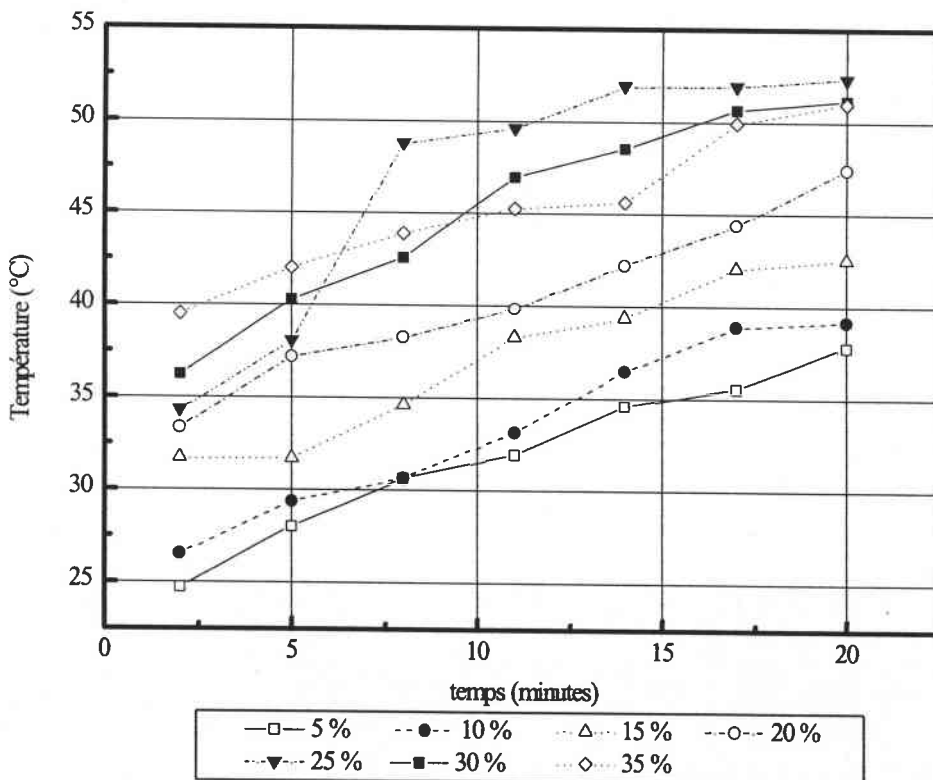


Figure 3-15: Evolution de la température en fonction du temps (fibres P55)

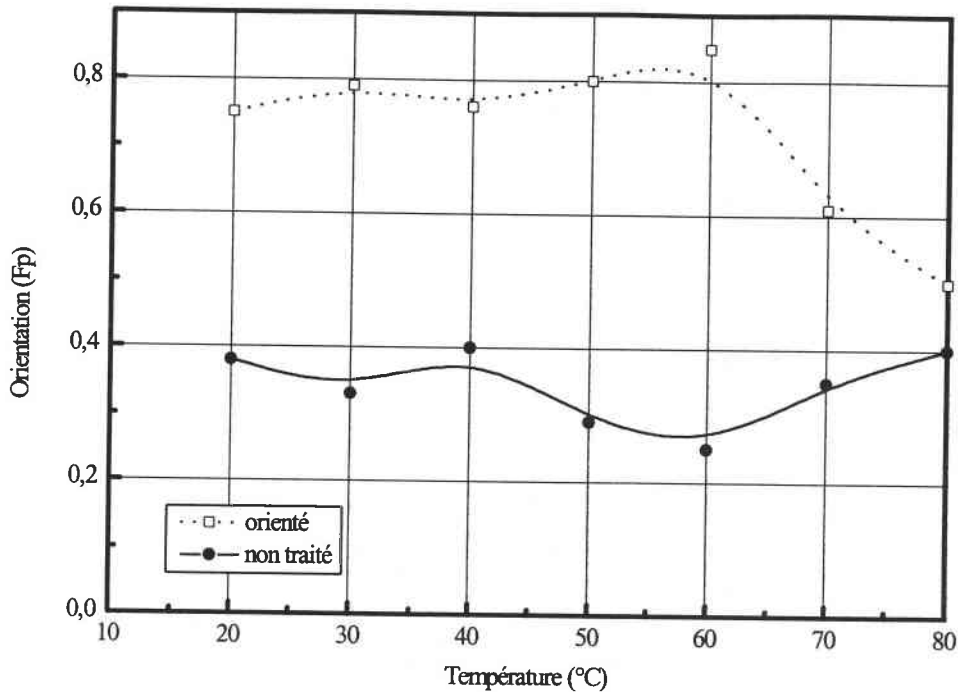


Figure 3-16: Evolution de l'orientation en fonction de la température:  
(10% de fibres, HF = 0.9, B = 0.75 teslas,  $t_{or}$  = 20 mn, résine ARC 12/15)

Si l'on décrit l'évolution du facteur d'orientation planaire en fonction de la température pour une concentration fixée en fibres (HF = 0.9, B = 0.75T), une chute significative de l'orientation est observable à partir de 70°C (figure 3-16). Les résultats obtenus dans le paragraphe 3-3-3-c sont donc confirmés.

#### d- Influence de la longueur des fibres

Une augmentation de la longueur des fibres entraîne elle aussi une diminution de l'orientation par un phénomène d'encombrement stérique et une augmentation des interactions fibre - fibre (figure 3-17). Cet effet est d'autant plus marqué que la concentration est élevée. Avec la longueur, les enchevêtrements sont de plus en plus fréquents et la liberté de mouvement des fibres (rotation...) devient de plus en plus restreinte. La limitation dans la puissance de notre dispositif ne permet pas de rompre ces contacts mécaniques. Il en résulte une mauvaise orientation.

Dans sa configuration actuelle, l'instrumentation utilisée ne permet d'orienter, avec un gain d'orientation intéressant par rapport aux techniques par injection, que des fibres dont la longueur est inférieure à  $200\mu\text{m}$ .

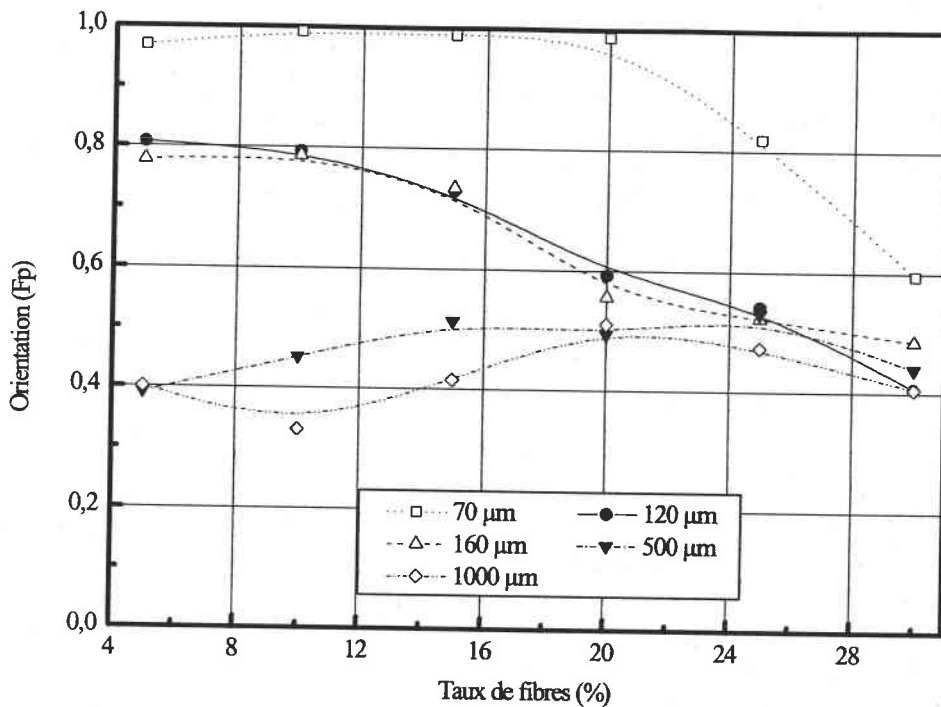


Figure 3-17: Evolution de l'orientation avec l'augmentation de la concentration pour différentes longueurs de fibres (HF = 0.9, B = 0.75 teslas, tor = 20 mm, fibres T300mld et résine ARC 40/32)

#### e- Influence du temps d'orientation

Les effets de la durée de l'orientation sous champs sont étudiés en tenant compte des puissances développées par le champ statique (figure 3-18) et par le champ haute fréquence (figure 3-19).

En ce qui concerne le champ statique (Fig.3-3-3-g), la meilleure orientation est obtenue au bout de 20 mn (HF = 0.9; B = 0.75 T). Pour une durée inférieure, l'orientation observée est de moins en moins bonne. Pour un temps d'orientation d'une minute, il n'y a pas de chute de l'orientation pour des champs statiques supérieurs à 0.8 teslas. La chute d'orientation est liée à une élévation importante de la température.

De ces résultats, on déduit que sur un intervalle d'une minute, l'échantillon n'a pas le temps de chauffer suffisamment pour que l'agitation thermique perturbe l'orientation.

Des essais ont été effectués pour des temps supérieurs à 20 mn sans conduire à des améliorations substantielles de l'orientation. Diminution de la durée d'utilisation de la résine époxyde et élévation de la température agissent de manière néfaste (à 60°C, la durée d'utilisation de la résine ARC 40/32 est de 20mn).

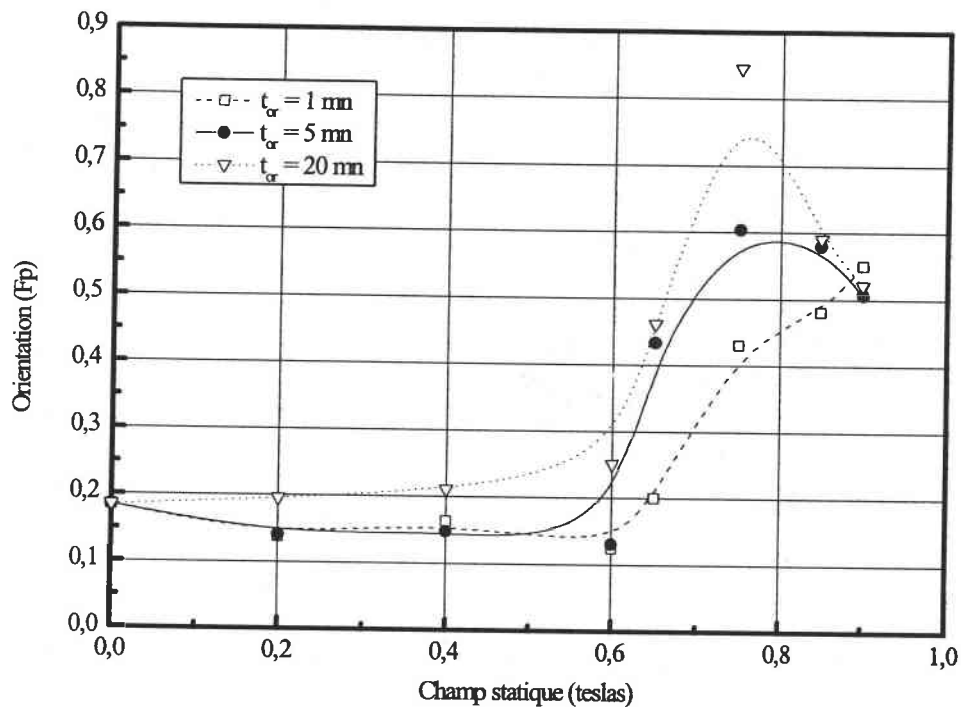


Figure 3-18: Evolution du facteur d'orientation planaire en fonction de l'intensité du champ statique pour différents temps d'orientation (avec un champ HF = 0.9 et 10% fibres T300mld)

L'évolution de l'orientation sous l'influence d'un champ haute fréquence croissant et pour différents temps d'orientation est donnée dans la figure (figure 3-19). La meilleure orientation est à nouveau obtenue pour un temps de 20 mn.

L'évolution de l'orientation en fonction du champ HF est quasiment linéaire. L'orientation maximale étant obtenue pour le champ HF le plus élevé. Aucune chute de l'orientation n'est observée pour un champ HF élevé.

Cela confirme que l'une des raisons de l'élévation de la température du mélange est l'électro-aimant et plus particulièrement la proximité entre les mors et la bobine haute fréquence. Il en résulte alors un échauffement excessif des mors et donc de l'échantillon.

Pour des temps d'orientation de 1mn et 5mn, les courbes ont une pente qui diminue pour des intensités supérieures à 0.6. Cela montre que même avec un champ haute fréquence élevé et pour une faible concentration en fibres, il faut un minimum de temps pour orienter toutes les fibres.

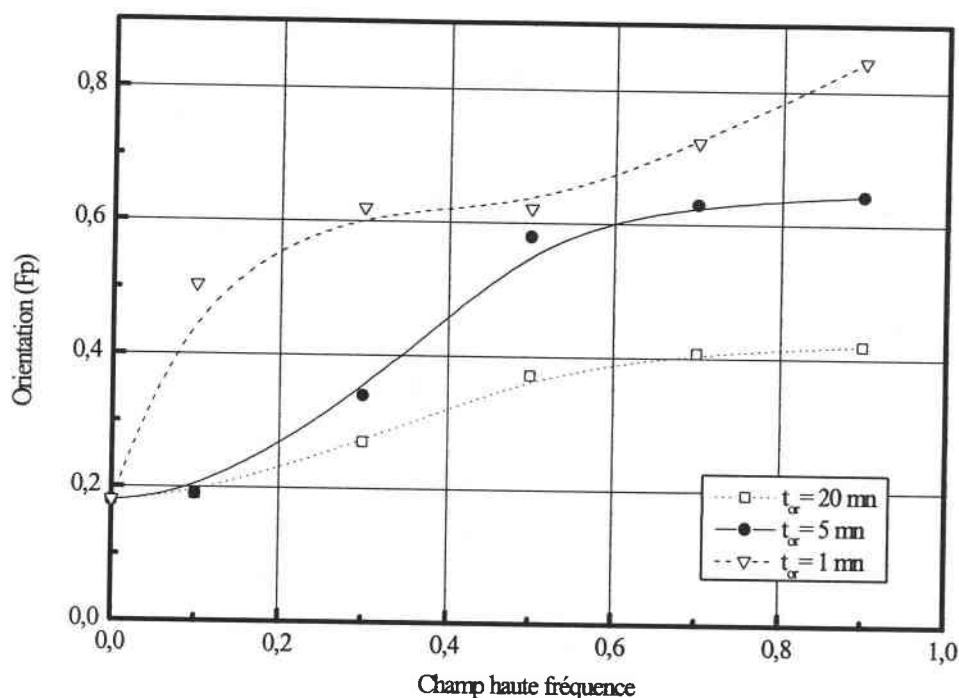


Figure 3-19: Evolution du facteur d'orientation planaire en fonction de l'intensité du champ haute fréquence (champ statique = 0.75 T; 10% de fibres T300mld)

### 3-3-4 Facteur d'orientation obtenu en fonction du type de résine (ARC 12/15, ARC 40/32, 5052, 219)

L'étude de l'orientation pour différentes résines permet de quantifier l'influence de la viscosité et la durée d'utilisation (figure 3-20). Certaines résines voient leur viscosité augmenter progressivement (AY105) alors que d'autres présentent une variation brutale au bout d'un temps donné (ARC 40/32).

La résine AY105 se comporte différemment par rapport aux autres du fait de sa viscosité très élevée. De bons résultats ont néanmoins pu être obtenus en utilisant un moule carré thermostaté (chapitre 1) qui permet de réguler la température de l'échantillon.



En chauffant le mélange à 65°C, des orientations de l'ordre de 0.8 ont été obtenues pour des concentrations inférieures à 10%. Au delà, les orientations chutent très rapidement et deviennent identiques à celles obtenues à 25°C.

En ce qui concerne les autres résines les orientations obtenues sont liées à la viscosité du mélange. Plus la viscosité est faible et plus le facteur d'orientation est élevé.

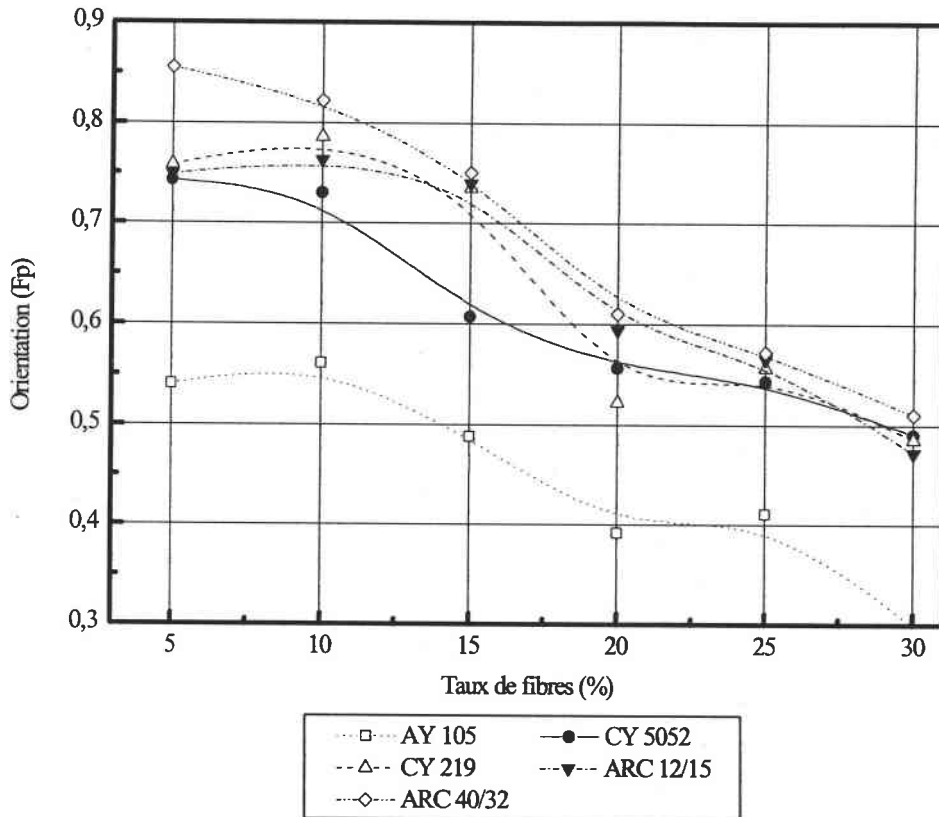


Figure 3-20: Orientation en fonction de la concentration en fibres pour différentes résines (HF = 0.9, B = 0.75 teslas,  $t_{or} = 20$  mn, T°C = 25, fibres T300mld)

### 3-4 Conclusion

Dans ce chapitre une étude de l'orientation des fibres de carbone à l'aide du dispositif mis au point a été effectuée. Un certain nombre de paramètres ont été pris en compte et leur influence évaluée. Il en ressort que l'élément essentiel qui agit sur l'orientation est la viscosité du mélange. Par conséquent tous les facteurs qui influencent la viscosité, dont la température, ont un effet sur l'orientation.

Les variations des paramètres régulant l'orientation ne sont pas indépendantes. Par exemple, pour mieux orienter les fibres, il faut augmenter le champ statique. Cela entraîne une élévation de la température, une diminution bénéfique de la viscosité mais malheureusement aussi une baisse de la durée d'utilisation de la résine, et donc du temps disponible à l'orientation...

Cette étude montre aussi les limites du montage actuel. Il apparaît primordial de pouvoir refroidir les mors de l'électro - aimant de façon à diminuer la chaleur dégagée. La longueur limite des fibres est de 200  $\mu\text{m}$  pour des concentrations inférieures à 20%. Pour aller au delà, il sera nécessaire d'augmenter la puissance du champ statique ou alors de mettre au point un dispositif permettant de démêler les agrégats de fibres pour faciliter leur orientation (par exemple un dispositif à ultrasons).

Pour des concentrations en fibres courtes ( $\sim 100\mu\text{m}$ ) inférieures à 20%, l'appareillage est très performant par rapport aux autres méthodes existantes. Il permet d'obtenir des matériaux composites à fibres courtes orientées de grande qualité. Il sera possible à l'avenir de produire des matériaux dont l'orientation est fixée au préalable et de vérifier ainsi les hypothèses de certaines simulations.

Dans cette optique, le chapitre suivant présente un certain nombre d'essais mécaniques qui sont comparés à des simulations. Puis dans le chapitre 5, des mesures de conductivité thermique sont effectuées sur les matériaux composites orientés et les résultats comparés aux simulations. Cela permettra de vérifier la validité du facteur d'orientation comme paramètre et de tester certaines simulations.

### **3-5 Bibliographie**

- [1] Gay D., "Matériaux Composites", Edition Hermes 1991.
- [2] Hine P.J., Davidson N., Duckett R.A., Ward J.W., Comp. Sci. and Technology, 53, 125-131 (1995).
- [3] Paulick C., Gasser J.G., Royer F.X., Brevet n° PCT/FR 9300354, Avril 1992.

- [4] Begemann M., Menges G., *Journal of Cellular Plastics*, Vol 25, n°5 (1989), 409-420.
- [5] Ko J., Youn J.R., *Polymer Composites*, Vol.16, n°2, Avril 1995.
- [6] Becker H., Fisher G., Müller U., *Kunststoffe German Plastics*, 83(3), 3-4, (1993).
- [7] Gennaro A., *Plastics and Rubber Processing and Applications*, 13, 251-261 (1990).
- [8] Ludwig H.C., Fisher G., Becker H., *Comp. Sci. and Technology*, 53, 235-239 (1995).
- [9] Truckenmüller F., Fritz H.G., *Polym. Eng. Sci.*, 37, 1316 (1991).
- [10] Moriwaki T., *Composites: Part A*, 27A, 379-384 (1996).
- [11] Basset B., Yee A., *Polymer Composites*, Vol.2, n°1 (1990), 10-18.
- [12] Suh C.H., White J.L., *J. Non Newtonian Fluid Mech.*, 62 (1996) 175-206.
- [13] Iso Y., Koch D.L., Cohen C., *J. Non Newtonian Fluid Mech.*, 62 (1996) 115-134.
- [14] Iso Y., Cohen C., Koch D.L., *J. Non Newtonian Fluid Mech.*, 62 (1996) 135-153.
- [15] Coran A.Y., Swaney L.R., Monsanto Company, United States Patent n° 3767505 (1973).
- [16] A.B. Institutet for Innovationsteknik, Brevet d'invention n° 7522879 (1975).
- [17] Tassone J.V., Candor J.T., Dayco Corporation, United States Patent n° 4559188 (1985).
- [18] Giacomel J.A., L.T.V. Aerospace and Defense Company, United States Patent n° 4560603 (1985).
- [19] Meek T.T., Mian R., Brevet d'invention n° 2579978 (1986).
- [20] Costello T.M., U.K. Patent Application n° 2190619 (1987).
- [21] Takashima M., *Fluid Dynamics Research*, 17 (1996) 293-310.
- [22] Ziabicki A., Jarecki L., *J. Non Newtonian Fluid Mech.*, 54 (1994) 269-283.
- [23] Jarecki L., Ziabicki A., *J. Non Newtonian Fluid Mech.*, 68 (1997) 43-60.

- [24] Fink B.K., Mc Cullough R.L., Gillespie Jr. J.W., *Composites Science and Technology*, 55 (1995) 119-130. .
- [25] Rheotest 2- 50 Hz- type RV2, VEB Combinat Medizin und Labortechnik, Leipzig.
- [26] Van Krevelen D.W., "Properties of Polymers", Elsevier Edition 1976.
- [27] Schmitt Y., Paulick C., Royer F.X., Gasser J.G., "J. Non Crystalline Solids", 205-207, 135-138 (1996).
- [28] Mc Grath J.J., Wille P.J., « *Comp. Sci. Tech.* », 53, 133-143, (1995).

**CHAPITRE 4:**

**FACTEUR D'ORIENTATION ET  
PROPRIETES MECANQUES**

L'intérêt croissant porté ces dernières années aux matériaux composites est dû au compromis très intéressant entre propriétés physiques et poids. Ce chapitre présente plus particulièrement les caractéristiques mécaniques des composites.

Les matériaux élaborés font partie de la gamme des composites de haute technologie, dont la résistance mécanique est proche de celle des métaux pour une densité nettement inférieure. Ceci explique en grande partie les efforts portés sur ces composites par les entreprises de pointe dans les domaines de l'aéronautique, de l'espace, de l'automobile...

Dans le cas de combinaisons résine polymérique - fibres courtes de carbone, les propriétés mécaniques élevées s'expliquent par l'association d'un matériau de faible densité et fortement déformable (la résine) à des fibres dont la résistance mécanique est très élevée et la déformation très faible. Ce sont les caractéristiques finales souhaitées du composite qui guideront le choix de la résine et du renfort.

Dans ce travail, on se situe en grande partie dans le domaine de déformation élastique du matériau (figure 4-1). Le but recherché est d'augmenter la valeur du module d'élasticité (ou module d'Young). Les tests mécaniques effectués sont uniquement des essais de traction. Le matériau idéal retenu comme borne supérieure de comportement est un composite à fibres de carbone longues, orientées dans la direction de sollicitation mécanique. A l'aide du dispositif expérimental mis au point (chapitre 3), des quantités croissantes de fibres sont orientées dans différentes résines de manière à suivre les variations du module d'Young et à se rapprocher du comportement du matériau idéal.

Après une présentation du matériel utilisé et des normes choisies, la variation du module d'Young est étudiée en fonction de différents paramètres de fabrication tels que l'intensité des champs, le type de résine, la porosité...

La cohérence des résultats expérimentaux avec différentes simulations mécaniques est vérifiée. Ceci permet d'évaluer ultérieurement leurs validités respectives mais aussi dans certains cas de vérifier si l'orientation déterminée par analyse d'images de la surface (chapitre 2) représente bien l'orientation du matériau en volume.

## 4-1 Bibliographie

De nombreuses théories permettent d'expliquer le comportement des matériaux soumis à une traction mécanique [1]. Si certaines d'entre elles reproduisent l'expérience en introduisant un ou plusieurs paramètres expérimentaux, d'autres sont le fruit d'une démarche théorique complète.

### 4-1-1 Le module d'élasticité dans un composite à fibres courtes

Le module d'Young  $E$  relie la contrainte appliquée au matériau  $\sigma$  à la déformation obtenue  $\varepsilon$  par l'intermédiaire de la loi de Hooke [1]:

$$\sigma = E\varepsilon \quad (4-1)$$

Dans la pratique, le module  $E$  est déterminé en prenant la pente à l'origine de la courbe reliant contrainte appliquée et déformation obtenue (figure 4-1). Cette courbe peut être décomposée en deux parties: l'une associée au domaine élastique et l'autre au domaine plastique. La partie élastique peut être approximée par une droite dont la pente est le module d'élasticité.

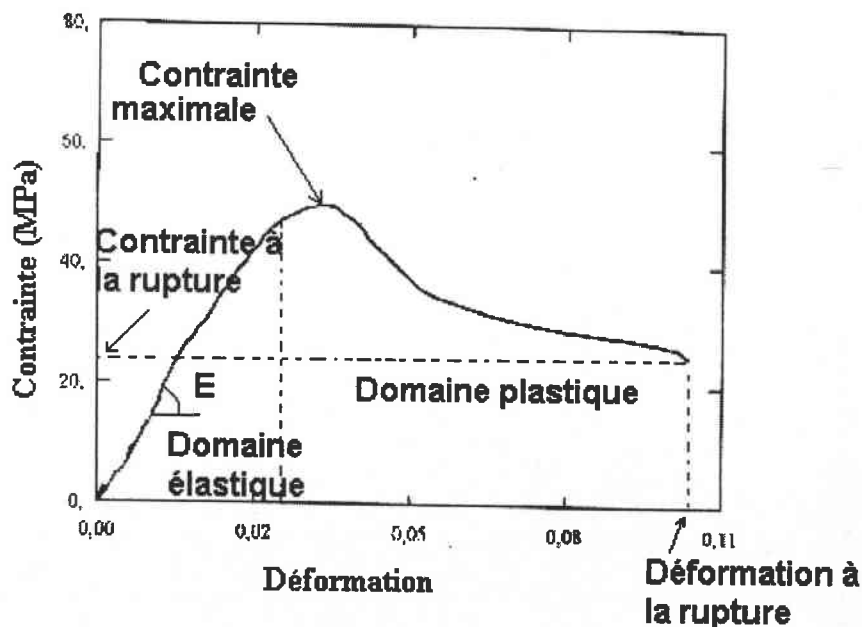


Figure 4-1: Courbe contrainte - déformation pour un polymère ( $E=1526\text{MPa}$ ) [1].

D'une manière générale, l'addition de renforts (fibres, billes, whiskers...) dans la résine va avoir pour effet d'augmenter cette pente et l'importance de la zone élastique tout en diminuant la partie plastique. Il en résulte un matériau dont la rigidité est améliorée.

Un second paramètre va caractériser la bonne tenue en sollicitation longitudinale du matériau: la contrainte à rupture. En effet, il est fréquent qu'une augmentation de la rigidité du matériau entraîne sa fragilisation ce qui rend nécessaire l'étude de la rupture.

Sous forme de fibres, la matière a une résistance à la rupture, et souvent un module d'élasticité, beaucoup plus élevée que sous forme massique. L'opération d'étirage lors de la fabrication des fibres élimine les défauts qui affaiblissent la matière et l'on obtient alors une structure anisotrope présentant une résistance et un module élastique croissants mais une déformation à la rupture décroissante lorsque le taux d'étirage augmente (chapitre 1 paragraphe 1).

Ce type de raisonnement peut être étendu au composite lui même. Ce dernier est formé d'une matrice polymère renforcée de fibres courtes. Le comportement mécanique du matériau va dépendre de l'orientation des renforts par rapport à l'axe de sollicitation mécanique. Plus l'alignement sera élevé et meilleur sera le comportement mécanique du matériau [2].

Un troisième facteur à ne pas négliger est l'interface renfort - matrice. Un bon mouillage de la surface des fibres voire l'établissement d'interactions physico - chimiques entre fibre et matrice sous forme d'ensimage (chapitre 1, paragraphe 2-1-b) est donc important.

#### 4-1-2 Modèles théoriques du module d'élasticité dans les composites à fibres courtes

Un certain nombre de théories, choisies arbitrairement, sont brièvement expliquées et regroupées par catégories.

##### a- Historique et présentation des modèles limites

###### \* Le modèle de Guth [3]



Une des premières modélisations du comportement des composites est basée sur l'équation d'Einstein donnant la viscosité d'un fluide avec des particules sphériques en suspension:

$$\eta_c = \eta_m(1 + K_E V_f) \quad (4-2)$$

$\eta_c$ : viscosité de la suspension;

$\eta_m$ : viscosité de la matrice;

$K_E$ : coefficient d'Einstein;

$V_f$ : fraction volumique des inclusions.

Guth a généralisé cette équation en introduisant un terme d'interaction entre particules. Pour des particules non sphériques, le module d'Young du composite  $E_c$  est donné en fonction du module de la matrice  $E_m$  et de la fraction volumique de fibres  $V_f$ :

$$E_c = E_m(1 + 0.67pV_f + 1.62p^2V_f^2) \quad (4-3)$$

où  $p=l/d$ , rapport de forme de la fibre ( $l$  sa longueur et  $d$  son diamètre), doit être tel que  $p \gg 1$ .

\* Modèles série et parallèle.

- Modèle parallèle:

ce modèle constitue la limite haute pour le module du composite [1]. La déformation est considérée comme uniforme dans les deux phases du matériau, l'une étant la fibre et l'autre la résine. Les deux phases sont associées en parallèle, ce qui permet de retrouver la loi des mélanges:

$$E_c = E_f V_f + E_m V_m \quad (4-4)$$

- Modèle série:

dans cette théorie, la contrainte est considérée comme uniforme dans un matériau formé de deux phases, l'une contenant les fibres et l'autre la résine, mises en série [1]. Le modèle qui en découle va constituer la borne inférieure du module du composite:

$$E_c = \frac{E_f E_m}{E_f V_m + E_m V_f} \quad (4-5)$$

b- Les modèles phénoménologiques

Ces modèles utilisent des paramètres expérimentaux.

\* Modèle de Cox [4]

Il s'applique aux fibres courtes parfaitement orientées. La charge appliquée est considérée comme transférée de la matrice à la fibre par un phénomène de cisaillement à l'interface représenté par un taux de cisaillement  $\tau$  fonction du rapport des modules des deux phases. Les contraintes dans la matrice étant négligées. Il vient:

$$E_c = E_m(1 - V_f) + E_f V_f \left(1 - \frac{\tanh(z)}{z}\right); \quad (4-6)$$

$$z = \frac{1}{2r} \left( \frac{2\tau}{E_f \ln\left(\frac{R}{r}\right)} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (4-7)$$

l: longueur de la fibre.

r: rayon de la fibre.

2R: distance du centre d'une fibre à une autre.

\* Modèle de Hirsch [5]

Ce modèle contient un paramètre expérimental  $x$  qui peut être relié à l'adhésion fibre - matrice. Avec  $x=0$ , on retrouve le modèle série et avec  $x=1$ , le modèle parallèle:

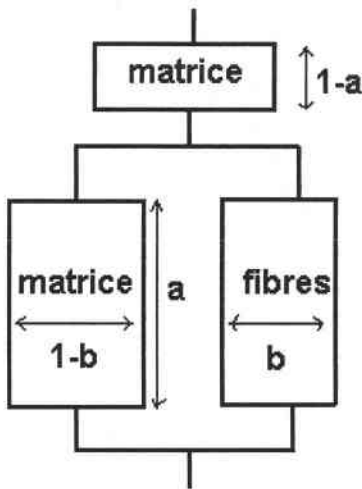
$$E_c = x(E_f V_f + E_m V_m) + (1-x) \frac{E_f E_m}{(E_f V_m + E_m V_f)} \quad (4-8)$$

\* Modèle de Takayanagi et Al. [6]

Tout comme le modèle précédent, celui ci combine modèles série et parallèle. Le paramètre expérimental est  $\alpha$  dont la valeur pour un matériau composite chargé de 3% de fibres est d'environ 2.

$$E_c = \left( \frac{\alpha}{(1-V_f)E_m + V_f E_f} + \frac{(1-\alpha)}{E_f} \right)^{-1}. \quad (4-9)$$

Ce modèle (bien adapté aux polymères cristallins) peut se représenter symboliquement par:



a: fraction volumique de l'élément en série;  
b: fraction volumique de l'élément en parallèle.

\* Modèle de Kelly et Tyson [7]

Il s'agit d'une amélioration de la loi des mélanges. Dans le cas d'un composite unidirectionnel, ce modèle tient compte des contraintes à l'interface et de la longueur des fibres. La matrice entourant la fibre est supposée se déformer plastiquement lorsque le cisaillement à l'interface atteint la valeur critique.

$$E_c = F_p \left( 1 - \frac{l_c}{2l} \right) E_f V_f + V_m E_m \quad (4-10)$$

$\bar{l}$ : longueur moyenne des fibres;

$l_c$ : longueur critique des fibres.

La longueur critique est définie comme la longueur de la fibre en dessous de laquelle se produit un arrachement de la fibre en plus d'un transfert de charge. Cette longueur peut être déterminée à l'aide de la formule de Hsueh [8]:

$$\frac{l_c}{r} \approx 4.7 \sqrt{\frac{E_f}{E_m}} \quad \text{avec} \quad \frac{E_f}{E_m} > 15 \quad (4-11)$$

\* Modèle de Halpin - Tsai [9]

Pour des composites à base de fibres courtes unidirectionnelles, les relations de base sont:

$$\frac{E_c}{E_m} = \frac{1 + 2\alpha\eta V_f}{1 - \eta V_f}; \quad (4-12)$$

$$\eta = \left(\frac{E_f}{E_m} - 1\right) / \left(\frac{E_f}{E_m} + 2\alpha\right) \quad \text{avec} \quad \alpha = l/d. \quad (4-13)$$

Dans le cas ou  $\alpha=1$ , on obtient le module transversal du composite.

\* Modèle de Counto[10]

La liaison entre particules et matrice est considérée comme parfaite. Ce modèle conduit à:

$$\frac{1}{E_c} = \frac{1 - V_f^2}{E_m} + \frac{1}{(1 - V_f^2) / V_f^2 E_m + E_f}. \quad (4-14)$$

\* Modèle de Paul [11]

La charge et la résine sont soumises à une contrainte macroscopique homogène. L'adhésion entre particules et matrice est supposée efficace (pas de décohésion):

$$E_c = E_m \left( \frac{1 + (m-1)V_f^{\frac{3}{2}}}{1 + (m-1)(V_f^{\frac{3}{2}} - V_f)} \right); \quad (4-15)$$

$$\text{avec} \quad m = \frac{E_f}{E_m}. \quad (4-16)$$

\* Modèle de Hashin et Shtrikman [12]

Ce modèle variationnel a pour but de réduire l'écart entre les modèles série et parallèle. On aura donc un modèle "bas" et un modèle "haut". Les auteurs prennent ici en compte la contraction de Poisson du composite et considèrent que la réponse du composite à

une sollicitation est isotrope et linéaire. A la différence des modèles de Voigt et Reuss, ce modèle prend en compte la présence d'une phase continue (la matrice) et d'une phase discontinue (les fibres).

Si  $K_c$  et  $G_c$  sont les modules de compressibilité et de cisaillement du composite, le coefficient de Poisson du composite est donné par:

$$\nu_c = \frac{3K_c - 2G_c}{2(G_c + 3K_c)} \quad (4-17)$$

On obtient ainsi les limites entre lesquelles doivent se trouver les résultats obtenus par d'autres théories plus approximatives.

### c- Modèles d'homogénéisation

#### \*La méthode de l'inclusion équivalente selon Eshelby [13].

Cette méthode est adaptée à des matériaux contenant de faibles concentrations en fibres (domaine dilué).

Eshelby considère que les contraintes internes du matériau sont dues à une inadéquation entre les formes des constituants (fibres et résine). Si l'on assimile une fibre à un ellipsoïde dont le facteur de forme est quelconque, on considère la contrainte comme uniforme sur toute sa surface.

Un composite supposé homogène et infini est décomposé en deux domaines: la fibre et la matrice. Pour une déformation imposée au matériau, l'amplitude de la déformation de l'inclusion est déterminée.

Eshelby a visualisé les déformations à l'aide de grilles dont les lignes représentent les différents déplacements et l'épaisseur la rigidité du matériau (figure 4-2).

La fibre est découpée dans le matériau élastique homogène non contraint et subit une déformation  $\bar{\epsilon}^T$  en dehors des contraintes appliquées à la matrice (on parle de déformation

libre). Son volume ayant changé, elle ne peut plus être remplacée tel quelle dans la matrice, sa surface doit être déformée de  $-\bar{\varepsilon}^T$ .

Une fois en position, fibre et matrice forment à nouveau un matériau homogène mais un champ de contraintes et de déformations élastiques se crée dans la fibre et dans la matrice. Le matériau est alors caractérisé par une hétérogénéité de prédéformation d'un milieu homogène et il n'y a pas d'hétérogénéité élastique.

En considérant le milieu isotrope, Eshelby recherche un équilibre entre fibre et matrice pour une déformation contrainte  $\bar{\varepsilon}^c$  liée à la forme initiale de la fibre. Comme la fibre est déformée uniformément, la contrainte de la fibre  $\bar{\sigma}_f$  est calculée avec la loi de Hooke en faisant intervenir la déformation élastique  $(\bar{\varepsilon}^c - \bar{\varepsilon}^T)$  ainsi que le tenseur de rigidité  $\bar{C}_M$ .

$$\bar{\sigma}_f = \bar{C}_M(\bar{\varepsilon}^c - \bar{\varepsilon}^T) \quad (4-18)$$

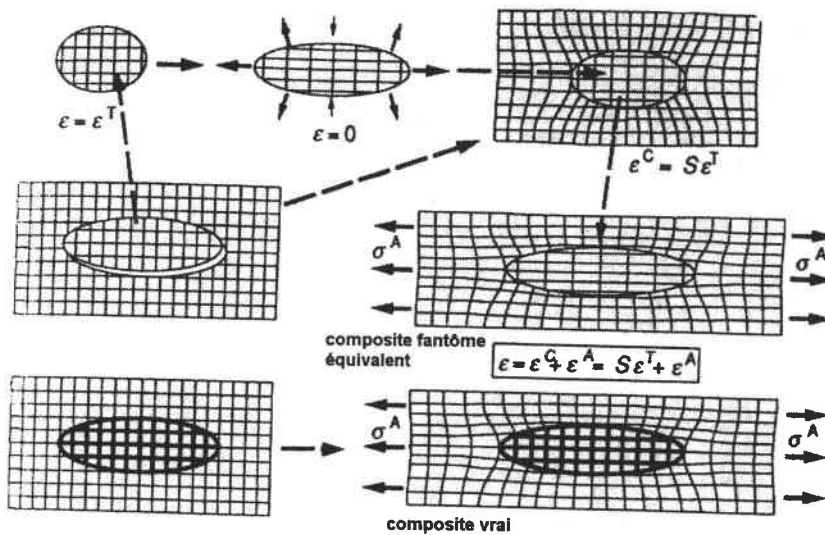


figure 4-2: Opération de déformation d'Eshelby

Pour une déformation donnée  $\bar{\varepsilon}^T$ , le calcul de la contrainte appliquée à la fibre nécessite donc la connaissance de la contrainte  $\bar{\varepsilon}^c$ . Eshelby montre que cette dernière peut être obtenue à partir de  $\bar{\varepsilon}^T$  en utilisant un tenseur appelé tenseur du quatrième ordre d'Eshelby. Celui ci est calculé en utilisant le facteur de forme de la fibre ainsi que le coefficient de Poisson du matériau (Tableau 4-1).

$$\bar{\varepsilon}^c = \bar{S} \bar{\varepsilon}^T \quad (4-19)$$

Le tenseur  $\bar{S}$  fait le lien entre la forme finale de la fibre soumise à une contrainte et les incertitudes initiales dues aux caractéristiques de la fibre. Connaissant la forme finale, la contrainte vraie subie par la fibre est évaluée en se basant sur le cas non contraint. Pour cela on combine (4-18) et (4-19) pour obtenir (4-20). La résolution de cette équation fera l'objet de tous les calculs liés aux inclusions.

$$\bar{\sigma}_f = \bar{C}_M (\bar{S} - \bar{I}) \bar{\varepsilon}^T \quad (4-20)$$

$\bar{I}$  : Matrice identité.

<b>Les éléments du tenseur d'Eshelby d'ordre 4 sont:</b>	
$S_{3333} = 0$	$S_{1212} = S_{1221} = S_{2112} = S_{2121} = \frac{3-4\nu}{8(1-\nu)}$
$S_{1111} = S_{2222} = \frac{5-\nu}{8(1-\nu)}$	$S_{1313} = S_{1331} = S_{3113} = S_{3131}$
$S_{1122} = S_{2211} = \frac{1+4\nu}{8(1-\nu)}$	$= S_{3232} = S_{3223} = S_{2332} = S_{2323} = \frac{1}{4}$
$S_{1133} = S_{2233} = \frac{\nu}{2(1-\nu)}$	
<b>et pour tous les autres:</b> $S_{ijkl} = 0$	
<b>avec:</b>	$l_1 = \frac{2s}{(s^2-1)^2} \left( \frac{2s}{3} (s(s^2-1))^{\frac{1}{2}} - \cosh^{-1} s \right)$
$Q = \frac{3}{8(1-\nu)}; R = \frac{1-2\nu}{8(1-\nu)}$	$T = Q \frac{(4-3l_1)}{3(s^2-1)}; l_3 = 4-2l_1$
<b>Avec les notations contractées suivantes:</b>	
$S_{iii} = S_{ii}; S_{ijj} = S_{ij}; S_{ijj} = \frac{1}{2} S_{3+k,3+k}$	$(i,j,k=1,2,3 \text{ et } i \neq j \neq k)$

Tableau 4-1: Le tenseur S d'Eshelby d'ordre quatre.

Lorsque l'on charge un composite élastique homogène, la fibre de module  $\bar{C}_f$  est assimilée à une hétérogénéité élastique induisant une perturbation de la contrainte appliquée

( $\bar{\sigma}^A$ ) et de la déformation observée ( $\bar{\varepsilon}^A$ ) (la matrice étant considérée comme homogène et infinie de module  $\bar{C}_M$ ). Dans le cas d'une inclusion homogène on aura donc:

$$\bar{\sigma}_f + \bar{\sigma}^A = \bar{C}_M(\bar{\varepsilon}^c - \bar{\varepsilon}^T) + \bar{C}_M \bar{\varepsilon}^A \quad (4-21)$$

$\bar{\sigma}_f$  est donné par (4-20) et on a:

$$\bar{\sigma}^A = \bar{C}_M \bar{\varepsilon}^A \quad (4-22)$$

Dans le cas d'un composite réel, la réponse du matériau à une sollicitation sera différente de celle du composite élastique homogène. La **méthode de l'inclusion équivalente** a pour objectif de se ramener au cas précédent. Si l'on dispose d'une liberté totale dans le choix de la forme de l'inclusion fantôme, la déformation libre  $\bar{\varepsilon}^T$  peut être choisie de façon à rendre compte de la contrainte réelle à laquelle est soumise la fibre lorsque le composite est soumis à une charge donnée. Les inclusions vraies et fantômes peuvent alors être interchangeables sans perturber la matrice.

La contrainte et la déformation sont donnés (4-23) dans le cas des inclusions fantômes et par (4-24) pour l'inclusion vraie (application de la loi de Hooke [1]):

$$\begin{aligned} \text{Déformation} &= (\bar{\varepsilon}^c + \bar{\varepsilon}^A) \\ \text{Contrainte} &= \bar{C}_f(\bar{\varepsilon}^c + \bar{\varepsilon}^A) \end{aligned} \quad (4-23)$$

$\bar{\varepsilon}^c$  étant la déformation de l'inclusion non perturbée.

$$\begin{aligned} \text{Déformation} &= (\bar{\varepsilon}^c + \bar{\varepsilon}^A) \\ \text{Contrainte} &= \bar{\sigma}_f + \bar{\sigma}^A = \bar{C}_M(\bar{\varepsilon}^c - \bar{\varepsilon}^T) + \bar{C}_M \bar{\varepsilon}^A \end{aligned} \quad (4-24)$$

Une comparaison avec l'expression de  $\bar{\varepsilon}^c$  (déformation avant l'application de la charge externe), donnée dans (4-19) permet d'obtenir la déformation appliquée à l'inclusion fantôme pour qu'elle corresponde à la contrainte réelle.

$$\bar{\varepsilon}^T = -[(\bar{C}_f - \bar{C}_M)\bar{S} + \bar{C}_M]^{-1}(\bar{C}_f - \bar{C}_M)\bar{\varepsilon}^A \quad (4-25)$$



Les déformations de l'inclusion fantôme étant connues, la contrainte exercée sur la fibre est déterminée d'après (4-24) et(4-21):

$$\bar{\sigma}_f + \bar{\sigma}^A = -\bar{C}_M(\bar{S} - \bar{I})[(\bar{C}_f - \bar{C}_M)\bar{S} + \bar{C}_M]^{-1}(\bar{C}_f - \bar{C}_M)\bar{\varepsilon}^A + \bar{C}_M\bar{\varepsilon}^A \quad (4-26)$$

Dans un **système non dilué**, la matrice n'est plus infinie et les contraintes qu'elle subit interagissent avec celles de la fibre. Cela se traduit par la superposition d'une contrainte  $\bar{\sigma}^b$  aux contraintes existantes.

Le bilan des contraintes donne alors :

$$(1-f)\bar{\sigma}^b + f(\bar{\sigma}_f + \bar{\sigma}^b) = 0; \quad (4-27)$$

f fraction volumique occupée par une fibre seule.

La contrainte  $\bar{\sigma}^b$  représente également les contraintes induites sur une fibre par ses voisines. Il suffit pour cela de remplacer f par  $V_f$  (la fraction volumique des fibres) dans (4-27).

$$(1-V_f) \langle \bar{\sigma} \rangle_M + f \langle \bar{\sigma} \rangle_f = 0 \quad (4-28)$$

avec:

$\langle \bar{\sigma} \rangle_M$  contrainte moyenne dans la matrice;

$\langle \bar{\sigma} \rangle_f$  contrainte moyenne dans les fibres.

On notera que cette approche ne prend en compte que les effets moyens de l'ensemble des fibres sur l'une d'elles.

Lorsqu'une charge externe est appliquée au matériau et pour des composites non dilués, les modifications à apporter au raisonnement précédent se traduisent par:

- contrainte sur l'inclusion fantôme:  $\bar{\sigma}_f + \langle \bar{\sigma} \rangle_M + \bar{\sigma}^A = \langle \bar{\sigma} \rangle_f + \bar{\sigma}^A$

- déformation de l'inclusion fantôme:  $\bar{\varepsilon}^c + \bar{\varepsilon}^A + \langle \bar{\varepsilon} \rangle_M$ .

En conséquence:

- pour l'inclusion vraie, (4-21) devient:

$$\langle \bar{\sigma} \rangle_f + \bar{\sigma}^A = \bar{C}_f(\bar{\varepsilon}^c + \bar{\varepsilon}^A + \langle \bar{\varepsilon} \rangle_M); \quad (4-29)$$

- pour l'inclusion fantôme (4-23) devient:

$$\langle \bar{\sigma} \rangle_f + \bar{\sigma}^A = \bar{C}_M(\bar{\varepsilon}^c + \bar{\varepsilon}^A + \langle \bar{\varepsilon} \rangle_M - \bar{\varepsilon}^T); \quad (4-30)$$

- pour la déformation libre (4-25) devient:

$$\bar{\varepsilon}^T = -((\bar{C}_M - \bar{C}_f)(\bar{S} - f(\bar{S} - \bar{I})) - \bar{C}_M)^{-1}(\bar{C}_M - \bar{C}_f)\bar{\varepsilon}^A. \quad (4-31)$$

Une fois  $\bar{\varepsilon}^T$  déterminée, la contrainte moyenne (pour une seule fibre) peut être calculée par:

$$\langle \bar{\sigma} \rangle_M = -f \cdot \bar{C}_M (\bar{S} - \bar{I}) \bar{\varepsilon}^T \quad (4-32)$$

$$\langle \bar{\sigma} \rangle_f = (1-f) \bar{C}_M (\bar{S} - \bar{I}) \bar{\varepsilon}^T \quad (4-33)$$

A partir de ces contraintes moyennes, il est alors possible d'atteindre les contraintes élastiques et d'en déduire les propriétés des matériaux.

Par définition, le module élastique du composite  $\bar{C}_c$  est relié à la déformation du composite (rapportée à son volume) sous une charge appliquée ( $\bar{\varepsilon}_c^A$ ).

$$\bar{\sigma}^A (= \bar{C}_M \bar{\varepsilon}^A) = \bar{C}_c \bar{\varepsilon}_c^A = \bar{C}_c (\bar{\varepsilon}^A + \langle \bar{\varepsilon} \rangle_c) \quad (4-34)$$

avec  $\langle \bar{\varepsilon} \rangle_c$  déformation moyenne du composite provenant des contraintes internes causées par les différences de rigidité.

$\bar{C}_c$  est évalué en considérant que dans la matrice les déformations internes moyennes provenant des inclusions sont nulles en moyenne. Ainsi, la déformation totale se décompose en une déformation moyenne de la matrice et une déformation présente uniquement dans les inclusions  $\bar{\varepsilon}_c$ . On en déduit:

$$\bar{\sigma}^A (= \bar{C}_M \bar{\varepsilon}^A) = \bar{C}_c \bar{\varepsilon}_c^A = \bar{C}_c (\bar{\varepsilon}^A + \langle \bar{\varepsilon} \rangle_c). \quad (4-35)$$

La déformation moyenne de la matrice est calculée en se basant sur le composite fantôme pour lequel le bilan des contraintes internes (4-27) s'écrit:

$$\begin{aligned} (1 - V_f) \bar{C}_M \langle \bar{\varepsilon} \rangle_M + V_f \bar{C}_M (\langle \bar{\varepsilon} \rangle_M + \bar{\varepsilon}^c - \bar{\varepsilon}^T) &= 0; \\ \langle \bar{\varepsilon} \rangle_M &= -V_f (\bar{\varepsilon}^c - \bar{\varepsilon}^T) = 0; \\ \langle \bar{\varepsilon} \rangle_c^A &= V_f \bar{\varepsilon}^T. \end{aligned} \quad (4-36)$$

Il en résulte la déformation moyenne du composite  $\bar{\varepsilon}_c^A = \bar{\varepsilon}^A + V_f \bar{\varepsilon}^T$

et en y substituant la valeur de  $\bar{\varepsilon}^T$  donnée dans (4-31) on obtient:

$$\bar{\varepsilon}_c^A = \bar{\varepsilon}^A - f((\bar{C}_M - \bar{C}_f)(\bar{S} - f(\bar{S} - \bar{I})) - \bar{C}_M)^{-1}(\bar{C}_M - \bar{C}_f)\bar{\varepsilon}^A. \quad (4-37)$$

La contrainte due à la charge appliquée se calcule à l'aide de (4-34).

$$\bar{\sigma}^A = \bar{C}_c \left[ \bar{C}_M^{-1} \bar{\sigma}^A - V_f \left\{ (\bar{C}_M - \bar{C}_f) [\bar{S} - V_f(\bar{S} - \bar{I})] - \bar{C}_M \right\}^{-1} (\bar{C}_M - \bar{C}_f) \bar{C}_M^{-1} \bar{\sigma}^A \right] \quad (4-38)$$

L'expression du tenseur de rigidité sera donc:

$$\bar{C}_c = \left[ \bar{C}_M^{-1} - V_f \left\{ (\bar{C}_f - \bar{C}_M) [\bar{S} - V_f(\bar{S} - \bar{I})] + \bar{C}_M \right\}^{-1} (\bar{C}_f - \bar{C}_M) \bar{C}_M^{-1} \right]^{-1} \quad (4-39)$$

Le module d'Young axial s'écrit à partir de la relation précédente:

$$E_{11c} = \frac{1}{\bar{C}_{3c}^{-1}} = \frac{\sigma^A}{\varepsilon_3^A + V_f \varepsilon_3^T}. \quad (4-40)$$

La méthode d'homogénéisation d'Eshelby sert de base aux méthodes auto-cohérentes présentées ci - après.

#### \* Quelques méthodes auto-cohérentes [14]

Ces simulations permettent de décrire le comportement de matériaux ayant des concentrations plus élevées en fibres.

Tous les renforts sont insérés successivement dans un milieu homogène équivalent ayant les propriétés du matériau composite étudié. Ce milieu subit une contrainte ou une déformation donnée.

L'équation du tenseur des modules effectifs est donné par

$$\bar{C} = \bar{C}_m + \sum_{r=1}^N X_r (\bar{C}_r - \bar{C}_m) \left[ \bar{I} + \bar{S}_r \bar{C}^{-1} (\bar{C}_r - \bar{C}) \right]^{-1} \quad (4-41)$$

Cette équation se résout de façon itérative, en prenant comme itération initiale le résultat obtenu par la méthode de simulation d'Eshelby.

Ces méthodes auto-cohérentes ont tendance à surestimer les propriétés mécaniques du composite lorsque les concentrations en fibres sont supérieures à 50%.

L'écart théorie - expérience que l'on observe à des concentrations élevées est dû au fait que dans ces modèles, la fibre est considérée comme entourée d'un matériau homogène dont les propriétés élastiques sont celles du composite. Or ces dernières sont inconnues.

#### d- Quelques modèles particuliers

Une méthode basée sur la contrainte moyenne dans le composite est développée par Mori et Tanaka en 1973 [15]. La fibre est placée dans un milieu correspondant mieux au milieu réel donc avec une meilleure prise en compte de la déformation de la matrice autour des fibres. La déformation moyenne de la matrice est traitée comme une déformation plus une perturbation. Pour une fibre, la déformation moyenne est calculée par la méthode de l'inclusion équivalente [13] vue précédemment. L'expression du tenseur des modules effectifs s'écrit:

$$\bar{C} = \bar{C}_m + \left( \sum_{r=1}^N V_r (\bar{C}_r - \bar{C}_0) \bar{T}_r \right) \left( V_0 \bar{I} + \sum_{r=1}^N V_r \bar{T}_r \right)^{-1} \quad (4-42)$$

$T_r$  tenseur de localisation calculé dans le cadre d'une homogénéisation en solution diluée;

$V_r$  la fraction volumique de la phase  $r$ .

Le milieu entourant la fibre est considéré comme ayant les propriétés de la matrice. La déformation moyenne de celle ci est obtenue en faisant varier la déformation macroscopique appliquée. Les résultats de cette modélisation sont fréquemment inférieurs à ceux provenant des modèles auto-cohérents. Ils sont assez proches de certains modèles phénoménologiques.

A titre d'information, on citera aussi le modèle du cluster [16]. Cette théorie relativement récente prend en compte les interactions mécaniques entre les fibres immergées dans la matrice prise comme référence.

## 4-2 Les techniques expérimentales

Les essais de traction permettent d'accéder à un certain nombre de renseignements par le biais de la courbe force - déplacement tels que la courbe contrainte - déformation, la contrainte à la rupture, les domaines élastique et plastique, le module d'élasticité.

### 4-2-1 L'appareillage utilisé

Dans notre cas, la machine de traction utilisée est du type ADAMEL - LHOMARGY DY 25 de 20 daN. Les essais sont effectués à température ambiante à une vitesse de 1mm/mn. L'appareil n'étant pas automatisé, les résultats sont recueillis sur papier millimétré. Le dépouillement des résultats nécessite de transformer la courbe force - allongement en courbe contrainte déformation. La déformation du matériau et la contrainte appliquée se déduisent de:

$$\sigma = F / S \quad (4-43)$$

$$\varepsilon = \Delta L / L_0 \quad (4-44)$$

- avec :
- $L_0$  longueur initiale de la partie efficace de l'éprouvette;
  - $\Delta L$  variation de la longueur;
  - $e$  épaisseur utilisée dans le calcul de  $S$ ;
  - $F$  force appliquée
  - $S$  section de l'éprouvette en son milieu.

### 4-2-2 Les normes choisies

Pour les essais de traction, un certain nombre de normes sont disponibles: ISO 527, ISO 3268 5M.C et ISO 6239 pour les petites éprouvettes. La norme retenue pour les composites étudiés en traction est référencée ISO R527 (Figure 4-3). Les contraintes expérimentales dans la fabrication des échantillons entraînent des dimensions des éprouvettes inférieures à celles imposées par la norme. Pour pallier à cette difficulté, un même rapport d'homothétie de 0.55 est appliqué pour toutes les gammes d'éprouvettes (Figure 4-4).

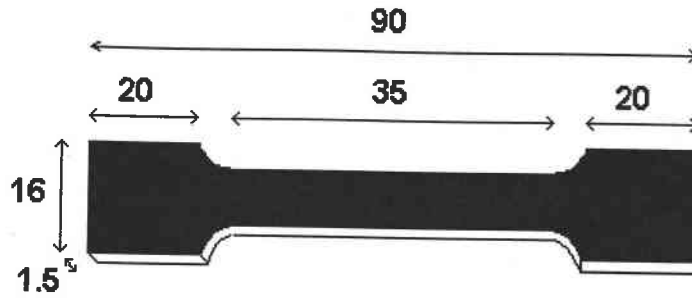


Figure 4-3: Norme ISO R527 pour éprouvette de traction

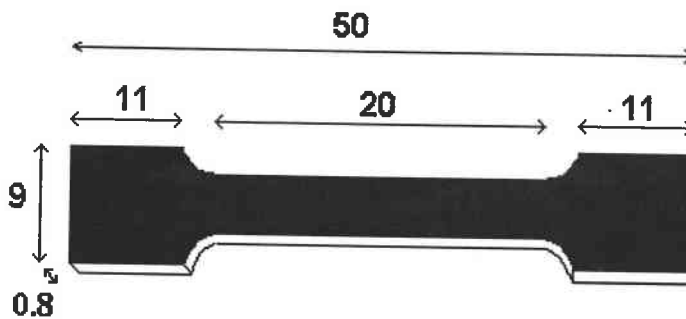


Figure 4-4: Dimensions de l'éprouvette de traction compte tenu d'un rapport d'homothétie de 0.55

#### 4-2-3 Les mesures de densité

Ces mesures ont pour but de déterminer le taux de porosité des éprouvettes de traction à l'issue des étapes de fabrication et d'usinage. L'importance du taux de porosité dans un matériau va influencer la résistance mécanique.

Les mesures sont réalisées à  $23 \pm 0.5^\circ\text{C}$  par immersion. Le poids de l'échantillon dans l'air (densité connue) est comparé à celui dans l'isopropanol (densité mesurée à l'aide d'un pycnomètre). La balance utilisée (réf. chapitre 1) permettant une mise à zéro, la pesée du porte échantillon dans l'isopropanol est donc inutile. La densité est calculée à partir de:

$$\text{densité}_{\text{expérimentale}} = \frac{(m_{\text{air}} * d_{\text{isopropanol}} - m_{\text{isopropanol}} * d_{\text{air}})}{m_{\text{air}} - m_{\text{isopropanol}}} \quad (4-45)$$

$$\text{densité}_{\text{théorique}} = V_{\text{fibres}} * 1,76 + (1 - V_{\text{fibres}}) * 1,1 \quad (4-46)$$

$$\text{Taux de porosité} = \frac{d_{\text{théorique}} - d_{\text{expérimentale}}}{d_{\text{théorique}}} \quad (4-47)$$

avec  $d_{\text{air}} = 0.0006473 \text{ g/cm}^3$ ,  $d_{\text{isopropanol}} = 0.7835 \text{ g/cm}^3$  et  $V_{\text{fibres}}$  la concentration volumique en fibres.

On notera que dans ce calcul de la porosité, les cavités présentes dans le matériau sont supposées être de densité nulle.

### 4-3 Résultats expérimentaux

Une résistance mécanique optimale nécessite l'absence de tout défaut (bulles d'air notamment). C'est pourquoi les mesures de porosité sont effectuées de façon systématique en relation avec d'autres paramètres de fabrication.

Les résultats des essais de traction sont présentés en fonction:

- du type de résine;
- de la quantité de fibres;
- de l'orientation des fibres par rapport à la direction de sollicitation mécanique.

Dans chaque cas, une comparaison avec des éprouvettes élaborées par injection (sans orientation par champs magnétiques) permet de visualiser l'intérêt du procédé d'orientation mis au point. Les résultats expérimentaux seront aussi confrontés à ceux découlant de modèles théoriques de comportement

Remarque: Dans un certain nombre de figures à venir, des interpolations ont été faites uniquement dans un souci de clarté.

#### 4-3-1 Les mesures de porosité

L'étude de la porosité des matériaux élaborés est effectuée dans ce chapitre car elle va influencer directement leur comportement mécanique. L'inclusion de bulles dans le matériau équivaut à la présence de défauts à partir desquelles le mécanisme de fracture du matériau va pouvoir s'initialiser. En diminuant la porosité, la résistance mécanique du

matériau composite est donc améliorée permettant aux fibres de jouer pleinement leur rôle de renforts.

La porosité va être reliée au mode de préparation du matériau (sous vide ou non), à l'intensité du champ haute fréquence appliqué, au type de fibre utilisé (broyées ou calibrées) et au type de résine.

#### a- Influence du mode de préparation sur la porosité

Lors d'essais préliminaires de fabrication, de nombreux pores sont apparus dans les éprouvettes de traction, d'où des caractéristiques mécaniques en traction largement insuffisantes. A titre d'exemple, le module d'Young d'un échantillon renforcé par 15% de fibres n'atteignait que deux fois celui de la résine seule.

Par la suite, la préparation du mélange résine - fibres - durcisseur a été faite sous vide. Ceci a nettement amélioré la qualité du matériau. Dans le cas des échantillons traités sous champs magnétiques un certain nombre de bulles sont encore visibles. Il a semblé à ce niveau intéressant de pouvoir maîtriser la formation de ce type de défauts en explorant les différentes conditions expérimentales.

#### b- Influence du champ HF sur la porosité

Dans le cas d'un échantillon à 10% de fibres T300 mld, la porosité a tendance à diminuer jusqu'à des valeurs du champ HF inférieures à 60 % du champ maximum. Puis, elle augmente légèrement pour des champs plus élevés.

Pour des temps d'orientation plus grands, l'allure de la courbe porosité = f (HF) est similaire mais les taux de porosité sont plus importants (Figure 4-5).

Lorsque la concentration en fibres augmente, la porosité croît et on tend vers un comportement linéaire.

La diminution de la porosité avec le champ haute fréquence s'explique par une diminution de la viscosité du mélange du fait de la hausse de température induite par les fibres (chapitre 3). Lorsque le temps d'application est trop long des phénomènes de convection thermique dans le mélange créent des bulles d'air dans le matériau.



Dans le cas de concentrations croissantes en fibres, les effets de la température et l'apparition de convection ont déjà été signalés. La durée d'utilisation de la résine diminue et on dispose de moins de temps pour évacuer plus de bulles. Il en résulte une porosité plus élevée.

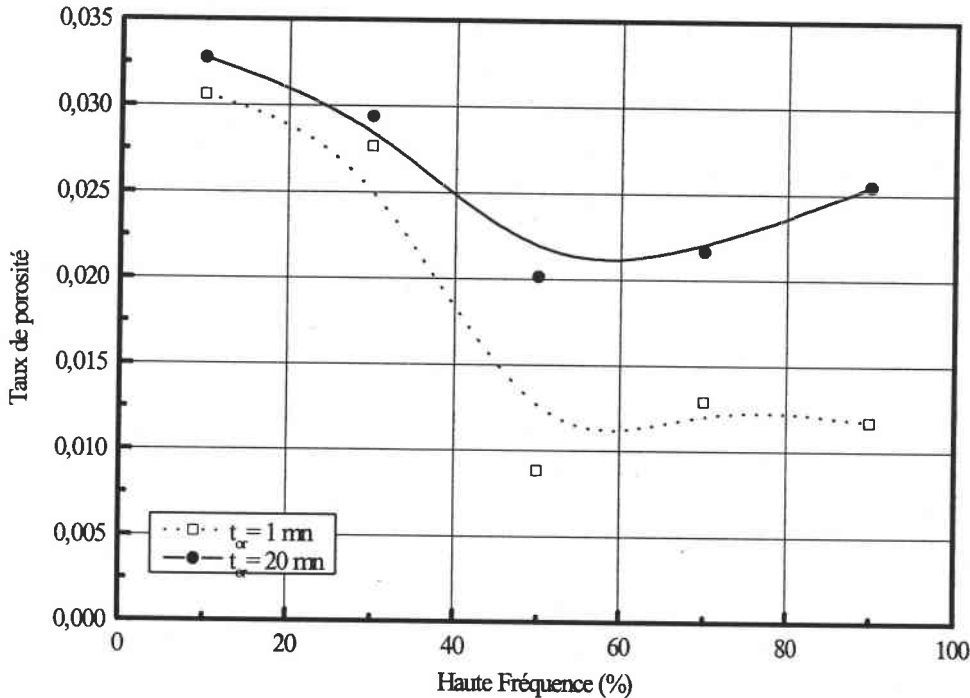


Figure 4-5: Influence du champ haute fréquence sur la porosité pour différents temps d'orientation ( $B = 0.75$  teslas, 10% de fibres T300mld, résine HY5051/CY219)

#### c- Influence du champ statique sur la porosité

Pour un temps d'application faible, la porosité diminue de façon quasi linéaire avec l'intensité du champ statique (figure.4-6). Par contre pour des temps d'application plus longs, la porosité a tendance à croître légèrement dans le domaine étudié.

Lorsque la concentration en fibres augmente, la porosité augmente de façon assez importante avec l'intensité du champ statique. Cet effet est d'autant plus marqué que le temps d'utilisation de l'electro - aimant est important.

Rappelons que l'application du champ statique a pour effet d'augmenter, proportionnellement à son intensité, la température de l'échantillon du fait du rapprochement des mors de l'aimant de la bobine haute fréquence (chapitre 3).

Lorsque la durée d'application de champs "forts" est courte, elle permet une augmentation suffisante de la température du mélange pour diminuer sa viscosité et faciliter l'élimination des bulles d'air.

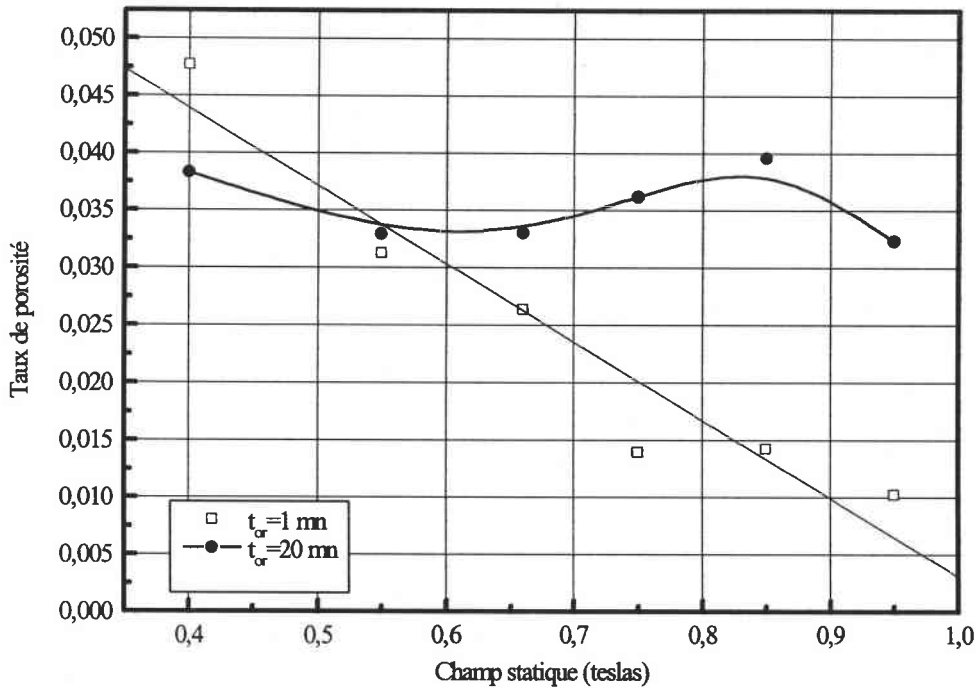


Figure 4-6: Evolution de la porosité avec le champ magnétique statique pour différents temps d'orientation (HF = 0.9, 10% fibres T300 mld, résine HY5051/CY219)

#### d- Influence du type de fibre sur la porosité

La porosité est toujours légèrement plus importante pour les composites fabriqués avec des fibres calibrées par rapport aux non broyées. La figure 4-7 représente le taux de porosité en fonction du taux de fibres pour tous les échantillons de chaque gamme ce qui permet de visualiser la dispersion des résultats..

Cette propriété peut s'expliquer par la longueur des fibres. Les fibres calibrées sont plus petites que les broyées. Il en faut plus pour obtenir une même masse volumique. Ces fibres piègent plus facilement les bulles d'air et le dégazage est moins efficace.

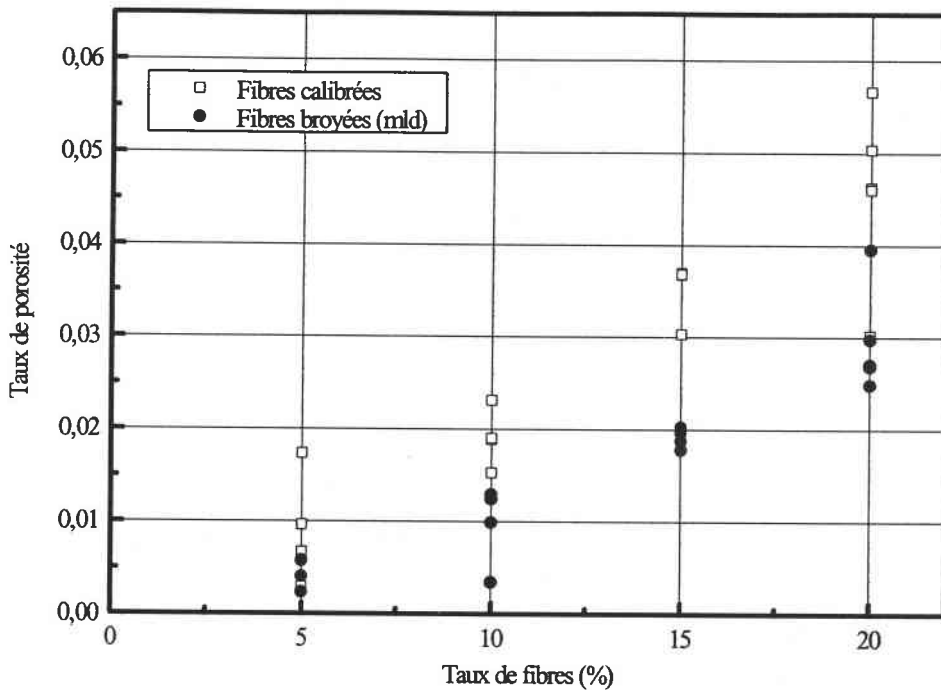


Figure 4-7: Evolution de la porosité en fonction de la concentration en fibres pour différents types de fibres (HF = 0.9, B = 0.75 teslas,  $t_{or}$  = 20 mn, résine HY5051/CY219, 10% fibres)

#### e- Influence de la résine sur la porosité

Il n'y a pas de différences très significatives observées entre les porosités moyennes obtenues avec les différentes résines lorsque la charge en fibres T300mld croît (figure 4-8).

Ces porosités équivalentes s'expliquent par les viscosités toutes très faibles des résines époxydes utilisées. Peu de bulles d'air sont ainsi emprisonnées et celles qui le sont s'évacuent assez facilement lors du dégazage. Les viscosités des résines étant très faibles, les quantités de renforts fibreux qu'il est possible d'ajouter sont très proches. La différence entre ces résines se situe au niveau de leurs propriétés physiques et de leur adaptation au procédé d'orientation utilisé.

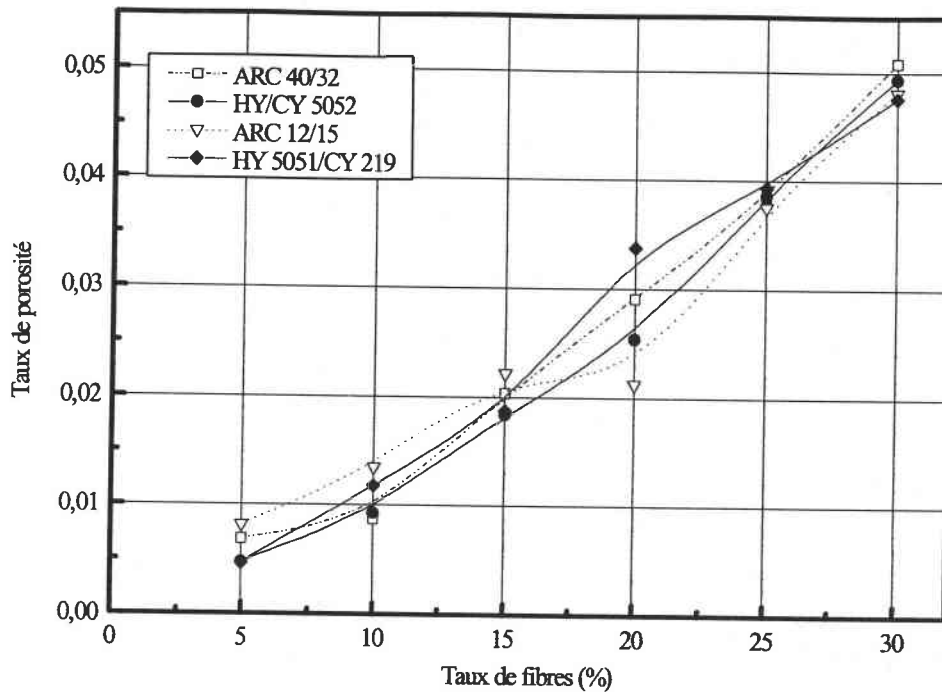


Figure 4-8: Evolution de la porosité moyenne en fonction de la concentration en fibres pour différentes résines (HF = 0.9, B = 0.75 teslas,  $t_{or}$  = 20 mn, fibres T300 mld, préparation sous vide, 4 échantillons par série)

#### 4-3-2 Les caractéristiques mécaniques obtenues pour différentes résines

Chaque point représentatif des figures de ce paragraphe que ce soit pour l'orientation ou la résistance mécanique, est la moyenne des mesures effectuées sur une série de cinq échantillons. Les paramètres essentiels pris en compte sont la concentration en fibres, leur orientation et la porosité du matériau.

Les essais sont réalisés avec comme finalité d'obtenir la meilleure résistance mécanique possible.

Les concentrations en fibres explorées sont inférieures à 30% et les observations décrites ne sauraient être extrapolées en dehors de ce domaine. Les caractéristiques des champs utilisés sont B = 0.75 teslas, HF = 0.9, T(°C) = 23, le temps d'orientation  $t_{or}$  = 20 mn et la préparation du mélange résine - fibres est menée sous vide.

##### a- La résine HY 5052 CY 5052

Cette résine possède un module d'Young de 2700 MPa pour une déformation à la rupture de 2.5 %. Sa viscosité est de 1400 mPa.s<sup>-1</sup>. Les facteurs d'orientation obtenus sont de l'ordre de 0.6 à 0.75 pour des concentrations en fibres de carbone T300 mld inférieures à 10%. Au delà, on observe une chute du facteur d'orientation (figure 4-9).

A titre de comparaison, les matériaux non orientés ont des valeurs de  $F_p$  qui ont tendance à croître avec la concentration en fibres pour passer d'une valeur de 0.3 à une limite située vers 0.4.

L'évolution de  $F_p$  est à comparer avec celle du module d'élasticité relatif  $E/E_0$ . Dans la plage de concentrations (< 20 %), la variation du module d'Young relatif avec la concentration en fibres suit une progression constante (figure 4-10) dans le cas des échantillons non orientés. Dans le cas des échantillons traités sous champs magnétiques, la croissance du module relatif est importante puis elle atteint un plateau. Le module relatif se rapproche alors de la série non traitée.

Une comparaison des modules relatifs entre échantillons traités et échantillons non traités met en évidence un gain de rigidité mécanique pouvant aller jusqu'à 50% pour un facteur d'orientation variant du simple au double.

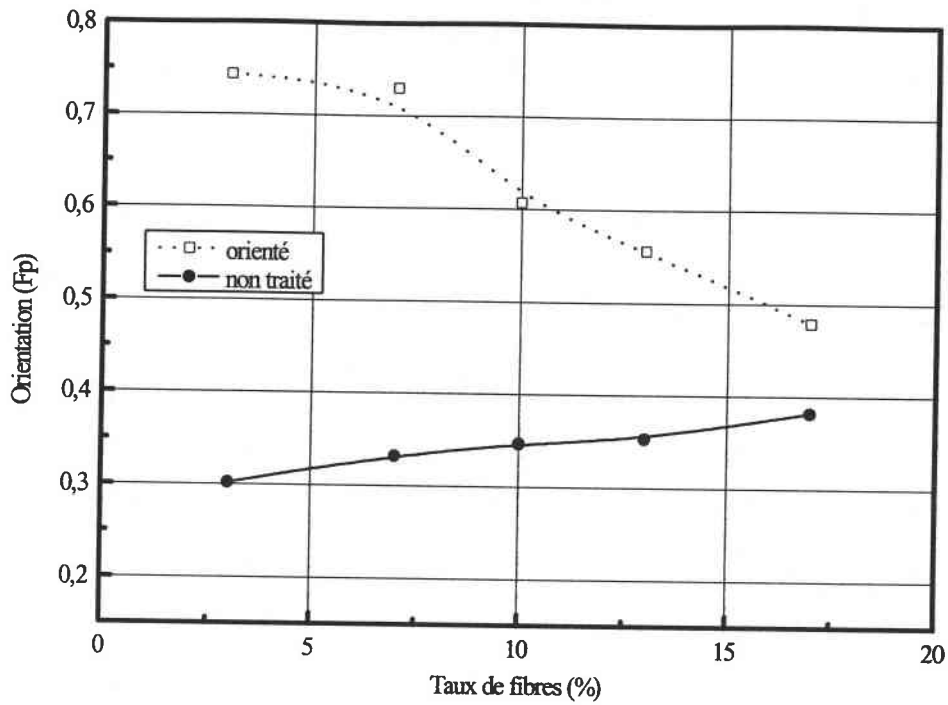


Figure 4-9: Evolution de l'orientation en fonction du taux de fibres dans la résine AY/CY 5052 (échantillons rectangulaires)

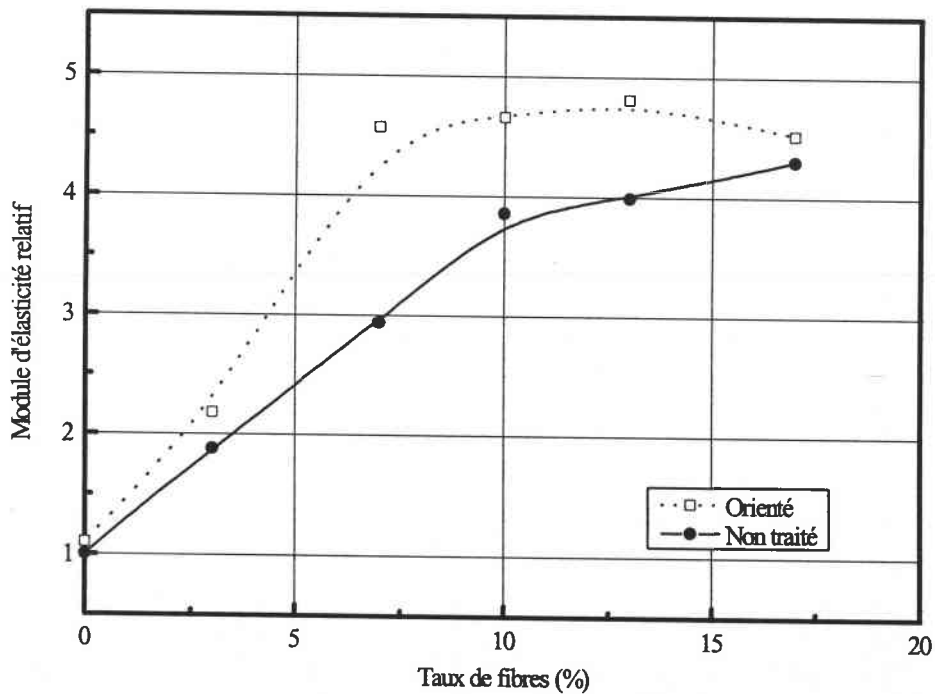


Figure 4-10: Evolution du module d'élasticité relatif en fonction du taux de fibres dans la résine AY/CY 5052

### b- La résine HY 5051 CY 219

Cette résine (viscosité  $1200 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$ ) est utilisée pour deux objectifs: mettre en évidence l'effet de l'orientation et évaluer les effets de la longueur moyenne des fibres.

Deux types de fibres ont été utilisées, des fibres T300-mld et des fibres T300 calibrées. Leurs différences se situent au niveau de la longueur moyenne mais aussi au niveau de la largeur du pic de distribution (voir chapitre 1).

#### \* Fibres calibrées

Les fibres T300 calibrées ont une longueur moyenne d'environ  $140 \mu\text{m}$  et un écart type de  $170 \mu\text{m}$ . L'évolution du facteur d'orientation des échantillons non traités est à nouveau quasiment linéaire avec la concentration en fibres (figure 4-11). Dans le cas des échantillons traités sous champs, on observe un maximum d'orientation pour 10 % de fibres ( $F_p = 0.8$ ) suivi d'une décroissance jusqu'à  $F_p = 0.4$ .

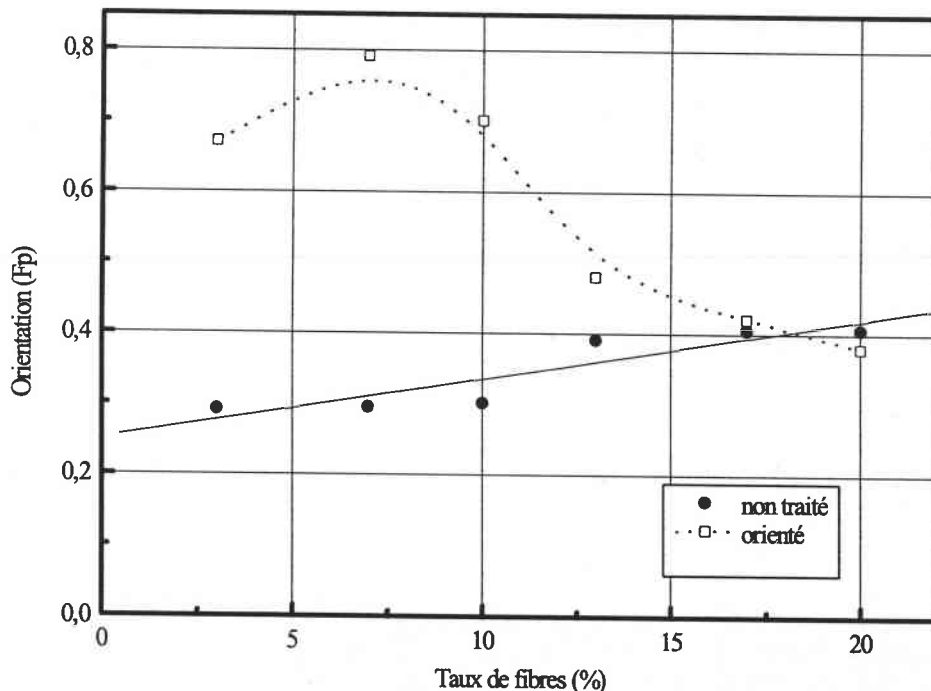


Figure 4-11: Evolution de l'orientation de fibres T300 calibrées en fonction de leur concentration dans la résine HY5051/CY219 ( $HF = 0.9$ ,  $B = 0.75$  teslas,  $t_{or} = 20\text{mn}$ )

Concernant l'évolution du module d'élasticité relatif en fonction du taux de fibres (figure 4-12), une quasi linéarité est observée dans le cas des matériaux non traités sous champs. Dans le cas des matériaux soumis aux champs magnétiques, on retrouve une courbe de même allure que celle observée dans le cas de la résine HY/CY 5052.

Les facteurs d'orientation des échantillons traités peuvent être jusqu'à trois fois ceux des échantillons non traités. Les gains en résistance mécanique qui en découlent sont dans ce cas de l'ordre de 10 à 30 %.

Lorsque la concentration en fibres augmente, la diminution des gains en modules relatifs est à corrélérer à la diminution des gains en facteurs d'orientation.

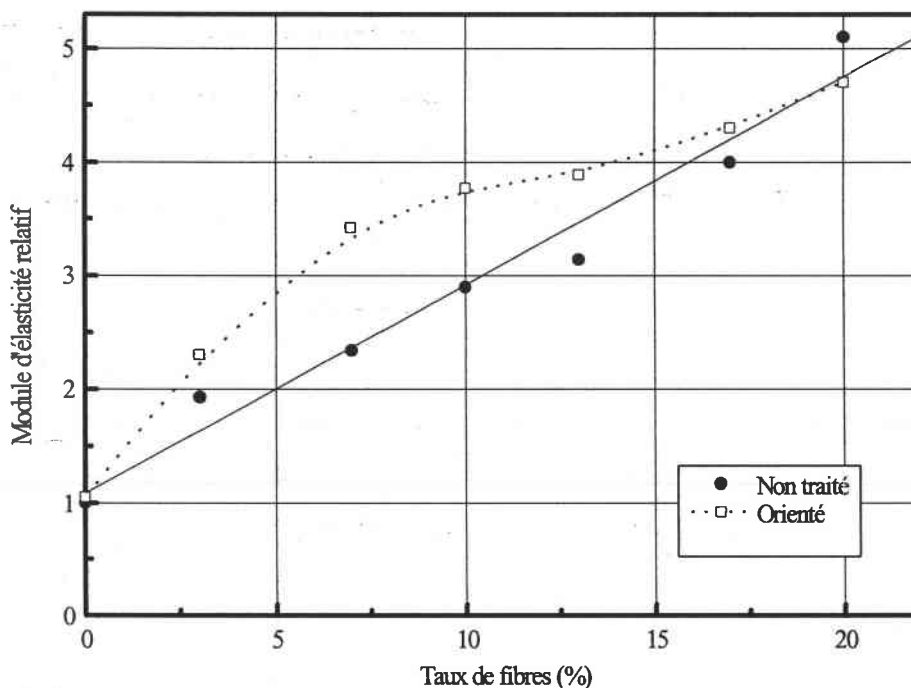


Figure 4-12: Evolution du module d'élasticité relatif en fonction de la concentration en fibres T300 calibrées dans la résine HY5051/CY219 ( $HF = 0.9$ ,  $B = 0.75$  teslas,  $t_{or} = 20$  mn)

\* Fibres mld

Dans le cas des fibres T300 mld de longueur moyenne  $160 \mu\text{m}$  pour un écart type de  $174 \mu\text{m}$ , l'évolution de l'orientation des échantillons traités en fonction du taux de fibres a la



même allure que dans le cas des fibres calibrées mais la variation des écarts entre les deux séries est moins importante (figure 4-13).

Les orientations maximales obtenues sont légèrement inférieures, mais pour les taux de fibres les plus élevés, le facteur d'orientation moyen est d'environ 0.55 contre 0.4 pour les fibres calibrées. Dans le cas des échantillons non traités, on retrouve une croissance quasi linéaire de l'orientation avec le pourcentage de fibres de  $F_p = 0.3$  vers  $F_p = 0.45$ .

Pour les échantillons traités sous champs, l'évolution du module d'élasticité relatif en fonction du taux de fibres suit toujours une évolution similaire aux figures précédentes mais la courbe est décalée vers le haut par rapport aux fibres T300 calibrées (figure 4-14). Ainsi pour 10% de fibres, le module relatif est de 5 alors qu'il n'est que de 3.8 pour les fibres calibrées. Les modules relatifs maximaux montrent la même différence (6 contre 5).

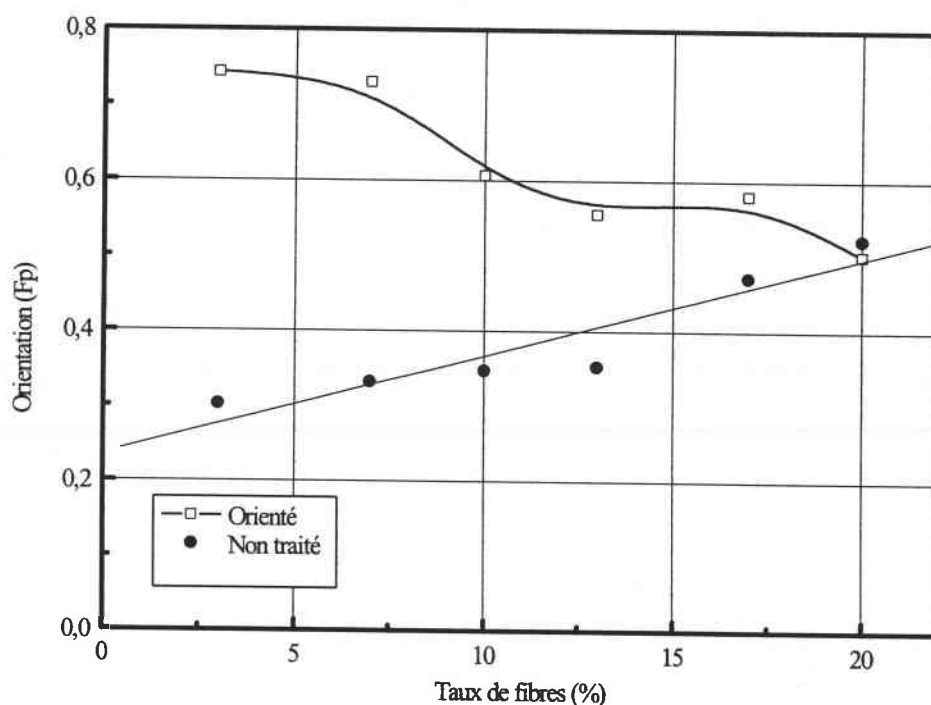


Figure 4-13: Evolution de l'orientation des fibres T300mld en fonction de leur concentration dans la résine HY5051/CY219 ( $HF = 0.9$ ,  $B = 0.75$  teslas,  $t_{or} = 20mn$ )

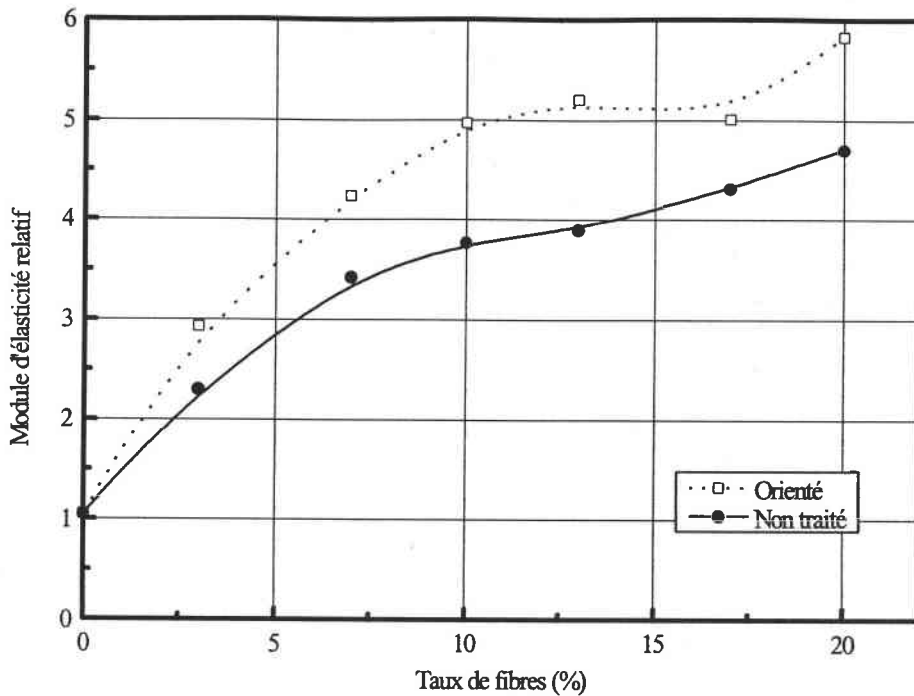


Figure 4-14: Evolution du module d'Young relatif en fonction de la concentration en fibres T300mld dans la résine HY5051/CY219 (HF = 0.9, B = 0.75 teslas,  $t_{or} = 20$  mn)

En ce qui concerne les échantillons non traités, l'évolution du module relatif avec le taux de fibres est linéaire si l'on ne prend pas en compte le point à 3% de fibres. Les résultats obtenus à cette concentration sont assez atypiques. Les orientations observées dans les séries traitées et non traitées sont relativement élevées par contre, les modules relatifs correspondant sont inférieurs à ce qu'ils doivent être pour suivre l'évolution quasiment linéaire observable pour chaque série.

La comparaison fibres T300 calibrées / T300 mld montre de meilleurs modules relatifs pour les T300 mld dans le cas des séries traitées et non traitées sous champs magnétiques. Une comparaison des orientations ne met pas en évidence de grandes différences. Par contre la longueur moyenne de la gamme T300 mld est supérieure à celle de la gamme T300 calibrée (chapitre 1) ce qui explique la meilleure résistance mécanique. Dans la résine HY 5051/ CY 219, la longueur critique des fibres de carbone T300 est de 152  $\mu\text{m}$ .

#### c- La résine ARC 12/15

Cette résine possède un module d'élasticité d'environ 1570 MPa pour une contrainte à la rupture d'environ 60 MPa, ce qui est nettement inférieur aux résines commerciales. Par contre, sa viscosité est de  $1200 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$ . Il en résulte de meilleures conditions d'orientation des fibres. Jusqu'à des concentrations de 15% en fibres, les facteurs d'orientation sont très bons ( $F_p > 0.75$ ).

Le module d'élasticité est inférieur à celui obtenu avec les résines de CIBA GEIGY quel que soit le taux de charge (pour 20% de fibres,  $E = 9750 \text{ MPa}$ ). Si on compare les échantillons traités sous champs à ceux non traités, on retrouve l'allure générale observée précédemment, à savoir une quasi droite pour les échantillons non traités et une droite de pente élevée suivie d'un plateau pour les échantillons traités sous champs. Les deux courbes se croisant pour environ 20% de fibres et un module relatif d'environ 6.

#### d- La résine ARC 40/32

Cette résine est celle possédant les meilleures qualités mécaniques (figure 4-15). On observe la quasi disparition du domaine plastique. La déformation à la rupture est assez faible. On a donc une résine plutôt fragile.

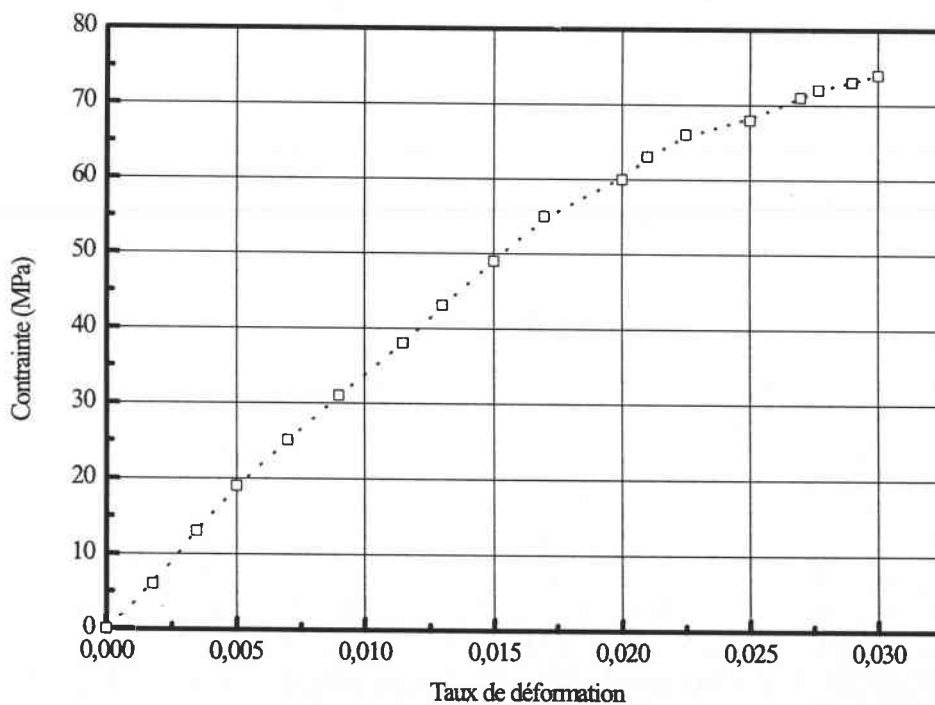


Figure 4-15: Courbe contrainte - déformation dans le cas de la résine ARC 40/32  
( $E \sim 3900 \text{ Mpa}$ , contrainte à la rupture de 75 Mpa et déformation à la rupture de 3%)

La résine ARC 40/32, dont la viscosité est inférieure à  $800 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$ , permet d'obtenir une très bonne orientation des fibres après traitement sous champs ( $F_p = 0.8$ ) et ce jusqu'à des concentrations en fibres de 10% en volume.  $F_p$  décroît jusqu'à des valeurs de l'ordre de 0.4 pour 20% de fibres (figure 4-16).

En ce qui concerne les échantillons non traités, on retrouve une croissance de l'orientation de 0.2 vers 0.4 pour une concentration en fibres comprise entre 0 et 20%.

Pour les échantillons non traités, le module relatif croît jusqu'à 4 (figure 4-17). Comme pour les autres résines, l'évolution du module relatif des échantillons orientés sous champs en fonction de l'augmentation du taux de fibres suit une courbe croissante dont la pente s'atténue avec la concentration.

Pour les fortes orientations (< 15% de fibres), les gains en modules relatifs sont jusqu'à 1.5 fois supérieurs aux échantillons non traités ce qui est le maximum obtenu toutes résines confondues. Par contre en ce qui concerne le module relatif maximal obtenu, il est inférieur à 4.5 ce qui est en deçà des résultats obtenus par exemple avec la résine HY 5051/CY 219.

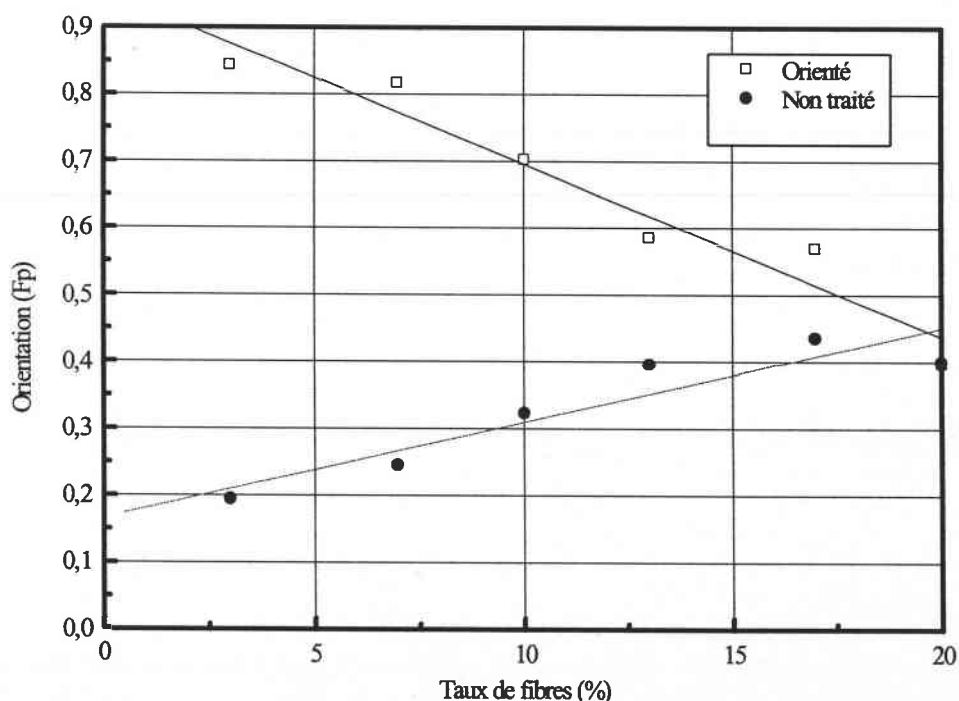


Figure 4-16: Evolution du facteur d'orientation en fonction de la concentration en fibres T300mld dans la résine ARC 40/32 ( $H_F = 0.9$ ,  $B = 0.75$  teslas,  $t_{or} = 20$  mn)

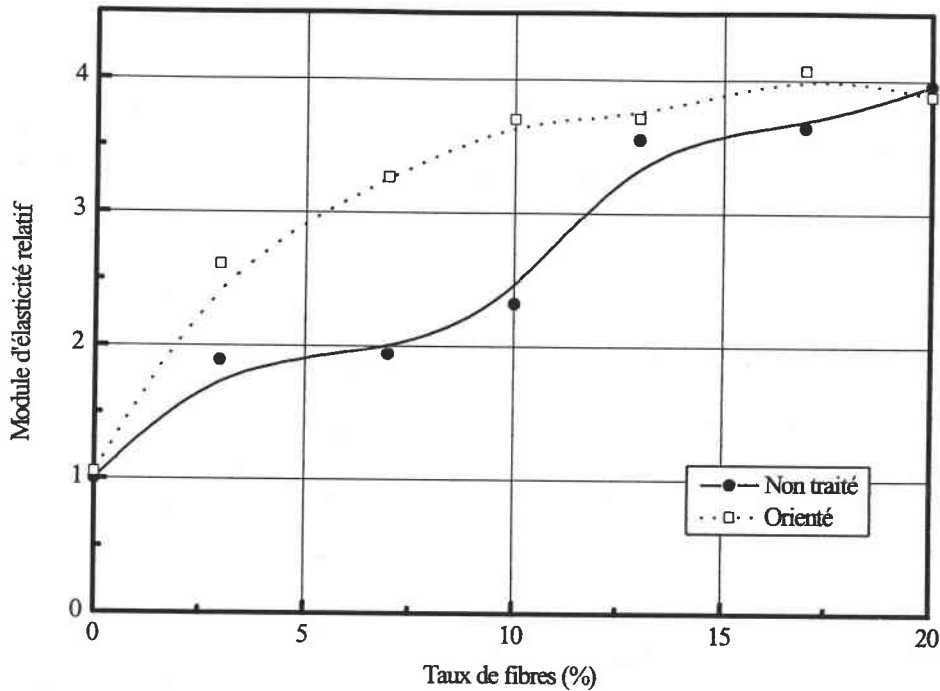


Figure 4-17: Evolution du module d'élasticité relatif en fonction de la concentration en fibres T300mld dans la résine ARC 40/32 ( $HF = 0.9$ ,  $B = 0.75$  teslas,  $t_{or} = 20$  mn)

#### 4-3-3 Interprétation des résultats expérimentaux

##### - La concentration en fibres:

d'une manière générale, l'orientation des fibres courtes de carbone dans un matériau composite améliore le module d'Young relatif. Pour une bonne orientation ( $F_p = 0.8$ ) et pour une concentration de l'ordre de 10 % en fibres, des gains allant jusqu'à 30% par rapport au matériau non traité sous champs magnétiques sont observables. Cette remarque est vraie pour toutes les résines époxydes utilisées bien que des fluctuations soient observables en fonction du type de résine et de fibre.

L'évolution du module relatif en fonction du taux de fibres est une courbe dont pente diminue avec l'augmentation de la concentration dans le cas des échantillons traités sous champs magnétiques alors qu'elle est progressive pour les éprouvettes non traitées. Afin d'expliquer cette différence, il faut considérer l'orientation moyenne du matériau.

Pour de faibles concentrations en fibres, l'orientation obtenue est très bonne ( $F_p > 0.7$ ) et le module est élevé en comparaison de l'échantillon non traité. Pour ces concentrations, la pente de la courbe reliant le module relatif à la concentration est donc grande. Lorsque la concentration en fibres augmente,  $F_p$  diminue et le module relatif se rapproche de plus en plus de celui du matériau non traité. Pour 20-30% de fibres (en fonction de la résine utilisée), les modules d'Young des matériaux traités et non traités sont quasiment identiques.

#### - Les résines:

les différences observées sur les modules d'élasticité à charge constante pour différentes résines s'expliquent par les orientations obtenues dans chaque cas (l'orientation est fonction de la viscosité de la résine, voir chapitre 3). La résine ARC 40/32 a un comportement particulier. Sa viscosité et les taux de porosités mesurés sont faibles, les orientations très élevées. Les modules relatifs obtenus sont cependant inférieurs à ceux de la résine HY5051/CY219 de propriétés physiques inférieures.

Cette particularité est liée aux conditions de polymérisation de la résine ARC 40/32. Le durcissement se fait en deux étapes: deux heures à température ambiante puis deux heures à 80°C. Si ce programme n'est pas respecté, les propriétés mécaniques de la résine chutent nettement. Le procédé d'orientation sous champs dégage beaucoup de chaleur comme nous l'avons détaillé dans le chapitre 3. On amorce de ce fait de manière précoce la polymérisation.

#### - Les types de fibres:

Les différences notables sur le module d'élasticité sont également observées en relation avec le type de fibre. Les fibres calibrées induisent une rigidité moindre que les fibres broyées qui ont une longueur moyenne supérieure.

Comme Hsueh [8] l'a montré, pour une résine donnée, il faut une longueur de fibre minimale pour optimiser l'effet du renfort. Dans le cas de la résine ARC 40/32, cette longueur est de 126  $\mu\text{m}$  et dans la résine HY 5051/ CY 219 elle est de 152  $\mu\text{m}$ . Si l'on se reporte à la distribution en longueur des fibres, la proportion de fibres de taille inférieure à la longueur critique est plus importante pour les fibres T300 calibrées. Leur contribution au renfort dans ces résines sera donc inférieur à celui produit par les fibres T300 mld.

Les fibres T300 calibrées sont plus petites, il en faut donc plus pour obtenir une même fraction volumique. S'il y a plus de fibres, il s'offre plus de possibilités aux bulles d'air pour s'accrocher, ce qui entraîne une augmentation de la porosité fragilisant encore plus le matériau.

Pour résumer l'ensemble des expériences citées, on peut dire que la résistance mécanique en traction étant directement liée à l'orientation des fibres dans le composite, notre méthode de fabrication sous champs permet d'obtenir des gains significatifs en module d'élasticité dans le domaine semi concentré. Le facteur d'orientation est très sensible au procédé d'élaboration utilisé (polymérisation prématurée). On peut dans de mauvaises conditions, induire une perte en résistance mécanique. Les meilleures orientations sont obtenues avec les résines ARC.

Les résines de CIBA GEIGY ont un module d'élasticité inférieur et une viscosité supérieure aux résines ARC mais sont moins sensibles au procédé de fabrication.

La résine HY5051/CY219 est un bon compromis car elle permet une bonne orientation et une bonne rigidité du matériau lors de l'essai de traction.

Ces résultats expérimentaux vont être utilisés pour tester la validité des hypothèses d'un certain nombre de simulations de comportement mécanique en traction.

#### 4-3-4 Comparaison entre quelques méthodes de simulation mécanique

Deux catégories de modèles sont abordés, des modèles phénoménologiques et des modèles auto cohérents.

##### a- Les modèles phénoménologiques (figure 4-18)

On vérifie bien que les résultats expérimentaux sont encadrés par les cas extrêmes que sont les modèles de Reuss et Voigt [1] (figure 4-18). Le modèle de Voigt est la limite haute pour laquelle la résistance des fibres est optimale. A l'inverse, dans le modèle de Reuss ou modèle en série, l'effet des fibres est minimal ce qui donne la limite basse au comportement mécanique du matériau.

Le modèle de Halpin - Tsai [9] est optimisé dans le domaine dilué (concentrations en fibres inférieures à 15%).

Cette observation est liée directement aux hypothèses du modèle qui assimile le composite à un matériau formé de fibres courtes unidirectionnelles alignées avec la direction de sollicitation mécanique.

Dans le domaine dilué, l'orientation obtenue par champs magnétiques est très bonne ( $F_p > 0,8$ ), un très bon accord expérience - théorie est donc obtenu avec le modèle d'Halpin - Tsai. Pour des concentrations plus élevées, l'orientation étant de moins en moins bonne, la théorie surestime de plus en plus les paramètres calculés et notamment le module d'élasticité.

Le modèle de Cox [4], qui s'applique également aux fibres courtes parfaitement orientées, conduit quasiment à une limite haute dans les domaines dilué et concentré.

Les valeurs calculées sont confondues avec celles déduites du modèle de Voigt [1].

Le modèle de Cox néglige totalement les contraintes dans la matrice ce qui n'est guère réaliste.

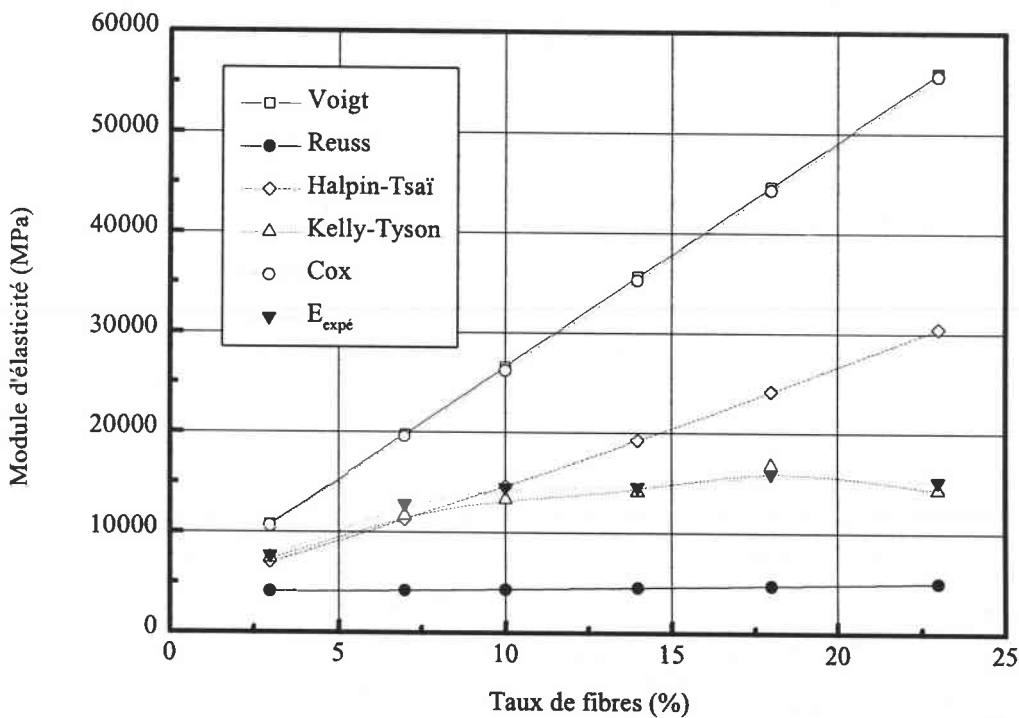


Figure 4-18: Modèles limites et simulations phénoménologiques du comportement en traction du matériau composite (résine ARC 40/32, fibres T300mld traitées sous champs)



Le modèle de Kelly et Tyson [7] quant à lui apparaît comme un bon compromis. Il sous-estime le module d'Young dans les domaines dilué et semi dilué mais reproduit correctement les résultats expérimentaux dans le domaine concentré.

Le comportement réel du matériau n'est pas parfaitement décrit car ce modèle est initialement développé pour des matériaux à comportement plastique.

#### b- Quelques modèles d'homogénéisation (figure 4-19)

Les modèles représentés sur la figure 4-19 sont issus du modèle d'homogénéisation d'Eshelby [13].

La borne supérieure du module d'élasticité est représentée par la simulation du comportement mécanique d'un composite à fibres longues (modèle de Voigt [1]).

Le modèle d'Eshelby [13] est confondu avec la borne supérieure.

Chen et Al. [17], reprenant certaines hypothèses d'Eshelby, ont développé leur propre modèle pour représenter le comportement mécanique d'un composite à fibres courtes.

Dans l'hypothèse de fibres parfaitement orientées avec la direction de traction, le modèle de Chen et al. se confond avec la courbe expérimentale pour les faibles concentrations. Dès que  $F_p$  diminue, le modèle surestime aussi les paramètres.

Ces auteurs ont mis au point un second modèle [17] qui tient compte de l'évolution de l'orientation du matériau. Celle-ci intervient par le biais du facteur  $\lambda$  provenant de la fonction de distribution de Kacir [18] (voir chapitre 2). Cette amélioration conduit à un modèle pour lequel l'accord théorie - expérience est correct.

Les différentes modélisations utilisées montrent que des précautions sont nécessaires surtout en l'absence de références expérimentales. Généralement, les modélisations ont été conçues dans des cadres particuliers en dehors desquels elles perdent tout ou partie de leur validité.

Les modèles d'homogénéisation permettent, du fait de leurs nombreux paramètres ajustables, une simulation plus objective du comportement mécanique des matériaux. Malheureusement, leur mise en œuvre est souvent délicate.

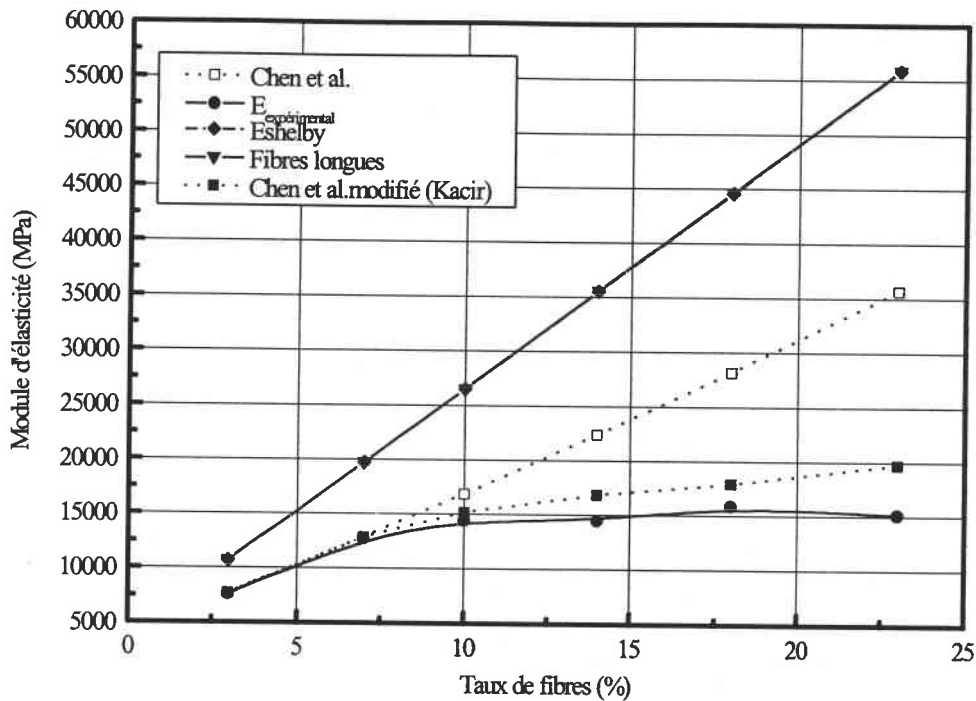


Figure 4-19: Comparaison de quelques modèles auto-cohérents avec les résultats expérimentaux (résine ARC 40/32, fibres T300mld traitées sous champs).

Notre analyse montre que les hypothèses trop restrictives de certains modèles conduisent à des limites hautes comme c'est le cas de Cox et Eshelby. En considérant un matériau avec des fibres parfaitement alignées, ils surestiment le comportement réel du matériau même pour des valeurs de  $F_p$  élevées.

Dans le droit fil de nos objectifs, les théories faisant intervenir  $F_p$  (Templeton [19], Chen [17]...) fournissent des informations intéressantes. En fixant une orientation moyenne des fibres à l'aide des champs magnétiques, la détermination exacte de la FDO des fibres par analyse d'images permet de valider les simulations sur un large domaine de concentrations.

#### **4-4 Conclusion**

Le comportement mécanique des matériaux composites à fibres courtes a été relié au paramètre  $F_p$  caractéristique de l'orientation. Les différents paramètres susceptibles d'influencer  $F_p$  lors de l'élaboration (porosité, mode de préparation, intensité des champs appliqués, caractéristiques des fibres et des résines) ont été analysés.

Un effort particulier a été porté sur la reproductibilité des résultats bien que des améliorations soient encore possible. L'ensemble des résultats expérimentaux a servi à valider les hypothèses des modèles de simulation. Fixer l'ensemble des paramètres d'élaboration (orientation finale comprise), devrait permettre d'ajuster le comportement mécanique, à la demande, dans les domaines dilués et semi dilués.

D'un point de vue industriel, il faudra se concentrer sur l'orientation des fibres dans le domaine concentré avec comme but d'atteindre des propriétés mécaniques spécifiques équivalente à des matériaux métalliques existants. Ceci passe par une augmentation du champ statique voire au développement de nouveaux mécanismes d'orientation.

Dans la suite de ce travail, nous allons nous intéresser plus particulièrement à une propriété physique tridimensionnelle, la conductivité thermique. Un montage original développé dans notre équipe va permettre d'atteindre la conductivité thermique et nous serons donc en mesure de corrélérer ce paramètre avec l'orientation  $F_p$ .

#### **4-5 Bibliographie**

- [1] François D., Pineau A., Zaoui A., "Comportement mécanique des matériaux", Vol.1, éditions Hermès, Paris (1991).
- [2] Fu S.Y., Lauke B., Comp. Sci. and Technology, 56, 1179-1190, 1996.
- [3] Guth E., J. Appl. Phys., 16,21, 1951.

- [4] Cox H.L., Brit. J. Appl. Phys., 3, 72, 1952.
- [5] Hirsch T.D., J. Am. Conc. Inst., 59, 427, 1962.
- [6] Takayanagi M., Vemura S., Minami S., J. Polym. Sci., 5C, 113, 1964.
- [7] Kelly A., Tyson W.R., J. Mech. Phys. Solids, 13, 6, 1965.
- [8] Hsueh C.H., Trends in Polymer Science, Vol.3, n°10, Oct.1995.
- [9] Halpin J.C., Tsai S.W., Air Force Material Laboratory Technical Report, 67-423, 1967.
- [10] Counto U.J., Mag. Concr. Res., 16, 129, 1964.
- [11] Paul B., Trans. Am. Inst. Mech. Eng., 36, 218, 1960.
- [12] Hashin Z., Shtrikman S., J. Mech. Phys. Solids, 11, 127, 1963.
- [13] Eshelby J.D., Proc. Roy. Soc. London, A241, 376-396, 1957.
- [14] Hill R., J. Mech. Phys. Solids, 11, 357, 1963.
- [15] Mori T., Tanaka K., Acta. Metall.,21, 571-574, 1973.
- [16] Berryman J.G., Berge P.A., Mechanics of Materials, 2, 149, 1995.
- [17] Chen C.H., Cheng C.H., Int. J. Solids Structures, 33, n°17, 2519-2539, 1996.
- [18] Kacir L., Narkis M., Ishai O., Polym. Eng. Sci., 17, 234-241, 1978.
- [19] Templeton P.A., J. Reinf. Plast. Comp., 9, 210, Mai 1990.

## **CHAPITRE 5:**

# **PROPRIETES THERMIQUES**

Les techniques de mesure de la conductivité thermique des matériaux sont en évolution constante tant au niveau de la précision des mesures que des temps de manipulation. On peut classer les dispositifs de mesure en fonction de la grandeur déterminée. Les techniques en régime transitoire ou quasi établi permettent de mesurer la diffusivité thermique  $a$  du milieu dans lequel s'établit le transfert de chaleur.

$$a = \frac{\lambda}{\rho C_p} \quad (5-1)$$

( $\rho$ : masse volumique;  $C_p$ : capacité thermique massique à pression constante;  $\lambda$ : conductivité thermique)

La diffusivité  $a$  est généralement obtenue par une mesure d'évolution de la température à un endroit de l'échantillon soumis à un flux thermique. On peut citer [1] deux méthodes couramment utilisées :

- la méthode "flash", qui consiste à apporter la chaleur sous forme lumineuse sur un côté d'un échantillon de faible épaisseur et à mesurer la température sur la face opposée;
- la méthode du "fil chaud", qui utilise une résistance insérée selon l'axe de l'échantillon (géométrie cylindrique de préférence). La puissance électrique dissipée par la résistance dans l'échantillon doit se rapprocher au mieux d'une fonction escalier. La température du fil dans l'échantillon est enregistrée en fonction du temps.

Sans procéder à une étude détaillée de ces méthodes, une analyse dimensionnelle de l'équation de la chaleur

$$\Delta T = \frac{1}{a} \frac{\partial T}{\partial t} \quad (5-2)$$

(avec  $a$  en  $\text{s.m}^{-2}$ ) montre l'impossibilité de déterminer la conductivité thermique par une seule mesure, si la capacité thermique n'est pas connue ou constante.

L'objectif est de déterminer l'anisotropie morphologique des échantillons en matériau composite. Indépendamment du fait que la capacité calorifique des fibres de carbone peut varier d'une qualité à une autre, elle n'est pas connue avec beaucoup de précision. L'anisotropie morphologique induit vraisemblablement une variation spatiale de la capacité

calorifique. En anticipant les difficultés liées à la modélisation de cette grandeur, les méthodes en régime transitoire et quasi - établi sont écartées au profit de mesures en régime permanent.

La conductivité thermique  $\lambda$  - ou le tenseur des conductivités thermiques  $\bar{K}$  dans le cas d'un échantillon anisotrope - peut être déterminée par une (ou plusieurs) mesure(s) simultanée(s) du flux thermique et du gradient de température en régime permanent.

$$\vec{\phi} = -\bar{K} \cdot \vec{\nabla}T \quad (5-3)$$

Le dispositif de mesure utilisé dans ce travail est une modification du dispositif proposé par Degiovanni [2]. Il ne permet de déterminer la conductivité thermique que dans une direction. On obtient ainsi la composante  $K_{11}$  du tenseur  $K$  des conductivités qui pour une éprouvette de symétrie cylindrique se présente dans sa forme simplifiée [3]:

$$\bar{K} = \begin{vmatrix} K_{11} & 0 & 0 \\ 0 & K_{22} & 0 \\ 0 & 0 & K_{22} \end{vmatrix}. \quad (5-4)$$

Notre choix s'étant porté sur des éprouvettes cylindriques, deux échantillons sont nécessaires pour accéder au tenseur complet. Pour le premier échantillon, le matériau est moulé de manière à ce que les fibres puissent s'orienter parallèlement à l'axe du cylindre (dans la direction du flux de chaleur). Le deuxième échantillon est moulé de sorte que les fibres s'orientent perpendiculairement à l'axe du cylindre. Une description détaillée du protocole expérimental se trouve dans le paragraphe suivant.

### 5-1 Réflexions sur la démarche expérimentale

Les contraintes du dispositif d'orientation sous champ magnétique limitent la réalisation des échantillons à des cylindres de diamètre 20 mm et de longueur 50 mm. L'usinage nécessaire et le souci de tailler plusieurs éprouvettes dans le même cylindre conduisent à concevoir un montage utilisant des échantillons cylindriques de diamètre compris entre 9 et 15 mm, et de 7 à 15 mm de hauteur. Le matériau composite est fabriqué à

partir de fibres de diamètre  $7\mu\text{m}$  et longueur typique  $160\mu\text{m}$ . Les dimensions des fibres sont donc très inférieures à la taille de l'échantillon.

Le schéma suivant (figure 5-1) décrit le dispositif expérimental en vue d'une discussion sur l'optimisation de la méthode.

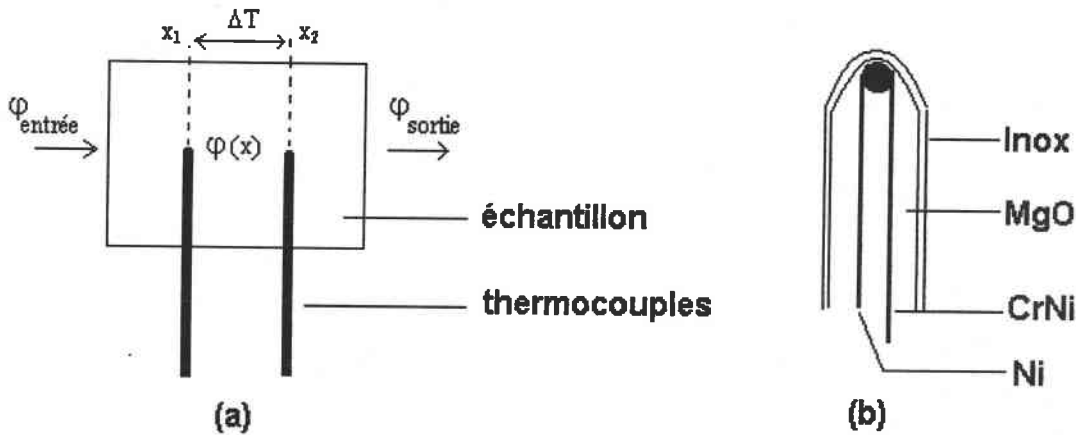


Figure 5-1: (a) présentation des grandeurs utilisées ( $\varphi_{\text{entrée}}$  flux entrant dans l'échantillon,  $\varphi_{\text{sortie}}$  flux en sortant et  $\varphi(x,y,z)$  le flux à un point donné dans l'échantillon);

(b) Thermocouple.

Les grandeurs qui doivent être optimisées sont les suivantes :

$$(1) \quad \left| \frac{\varphi_e - \varphi_s}{\varphi_e} \right| \ll 1, \quad (5-5)$$

réduction maximale des échanges de chaleur latéraux;

$$(2) \quad \varphi_e = \varphi(x) = \text{constante}, \quad (5-6)$$

réduction de la perturbation du flux de chaleur par les capteurs de température et absence de pertes de chaleur latérales à travers les fluxmètres;

$$(3) \quad \delta\left(\frac{dT}{dx}\right) \ll 1 \quad (5-7)$$

réduire l'erreur de mesure du gradient de température. Un bon positionnement des capteurs est donc impératif. S'ils perturbent le flux de chaleur (2), il y a risque de produire des effets indésirables pour les mesures de température et ce particulièrement quand des thermocouples sont utilisés.



La détermination d'un écart de températures de quelques dixièmes jusqu'à quelques degrés implique une mesure de forces électromotrices de quelques  $\mu\text{V}$  [4]. Des offsets considérables se superposent aux tensions caractéristiques du phénomène étudié et doivent donc être maîtrisés.

## 5-2 Description du dispositif

L'échantillon est enserré entre deux blocs montés sur un statif de précision. Chacun des blocs constitue un petit réservoir thermostaté par un bain indépendant. Vers l'échantillon, le réservoir est fermé par une plaque en cuivre recouverte d'une fine couche de résine époxyde, dans laquelle le fluxmètre est incorporé. Le même système est monté de manière symétrique par rapport au plan médian. L'épaisseur de la couche d'époxyde est de 0.7 mm, celle du fluxmètre de 0.3 mm.

Comme fluxmètre, nous avons utilisé le modèle 20450-3 de la société RdF qui présente une sensibilité de  $0.055 \mu\text{V} \cdot \text{W}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$  pour une résistance thermique de  $274.32 \text{ K} \cdot \text{W} \cdot \text{m}^{-2}$ . Ce fluxmètre se trouve le plus près possible de l'échantillon.

Les mesures électriques sont effectuées à l'aide d'un multimètre Keithley 2001 de résolution 100 nV avec pour le calibre 200 mV une erreur de 1.2  $\mu\text{V}$  sur 24 heures, équipé d'une carte scrutateur 8 voies qui permet de lire les tensions des 2 fluxmètres et des 2 thermocouples.

La source froide est réalisée à l'aide d'un gant en cuivre plongé dans un réservoir d'environ 3 litres d'eau glacée. Les contacts isolés sont immergés dans de l'huile de paraffine à l'intérieur du gant en cuivre.

La figure 5-2 donne les positions relatives des différents éléments en respectant les proportions. Le réservoir chaud est placé en haut et le froid en bas. Le gradient de température est donc orienté vers le bas ce qui limite les effets de convection.

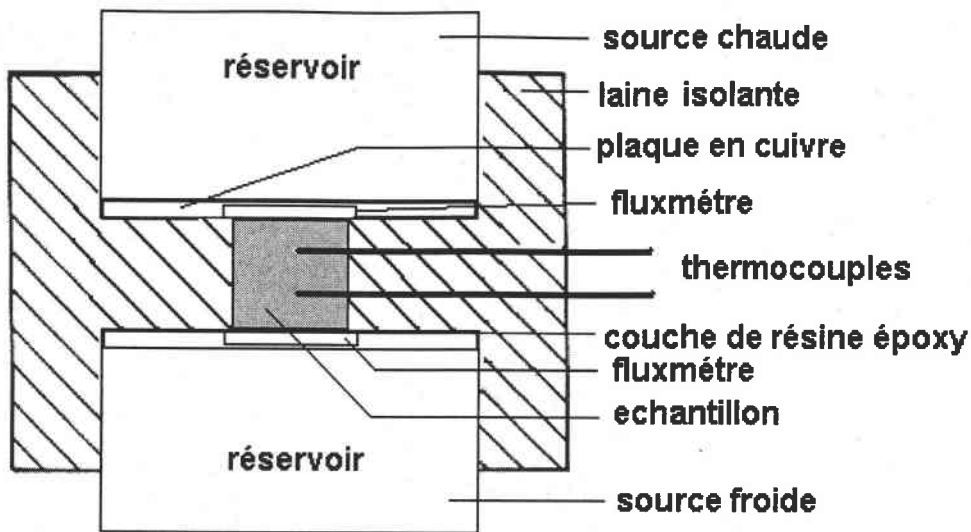


Figure 5-2: Dispositif de mesure thermique utilisé.

Dans une phase initiale, le dispositif a été testé sur un échantillon en aluminium technique AU4G. Nous avons espéré possible la mesure du gradient de température par le biais de deux thermocouples minces (épaisseur  $25\ \mu\text{m}$ ) isolés thermiquement des autres conducteurs par une couche de  $10\ \mu\text{m}$  d'époxyde et placés aux interfaces entre fluxmètres et échantillon. La reproductibilité des mesures n'a pas été très satisfaisante. Les interfaces dispositif - échantillon introduisent des gradients supplémentaires d'environ 10 à 20 % de ceux mesurés sur l'échantillon. Raison pour laquelle les thermocouples ont toujours été placés directement dans l'échantillon.

Bien que certaines interfaces aient été négligées, le dispositif développé conduit à considérer le flux de chaleur à travers l'échantillon comme constant. La figure 5-3 reproduit un profil de gradients thermiques pour l'échantillon en aluminium. La résistance thermique du montage (y compris les plaques en époxyde et les fluxmètres) est considérée comme la somme des résistances de chaque élément. Les interfaces sont traitées comme des résistances thermiques supplémentaires.

On s'aperçoit notamment sur ce profil (figure 5-3) que les deux interfaces aux extrémités de l'échantillon peuvent induire des gradients de température de l'ordre de 10% du gradient mesuré dans l'échantillon (calcul basé sur deux interfaces de  $0.05\ \text{mm}$  avec  $\lambda = 1\ \text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  et un échantillon de hauteur  $20\ \text{mm}$  en Al AU4G,  $\lambda = 140\ \text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ). La chute de température liée aux couches époxydes est souhaitable car elle réduit les fluctuations de

température liées aux variations de température dans les bains (indiquées en gras sur la figure 5-3).

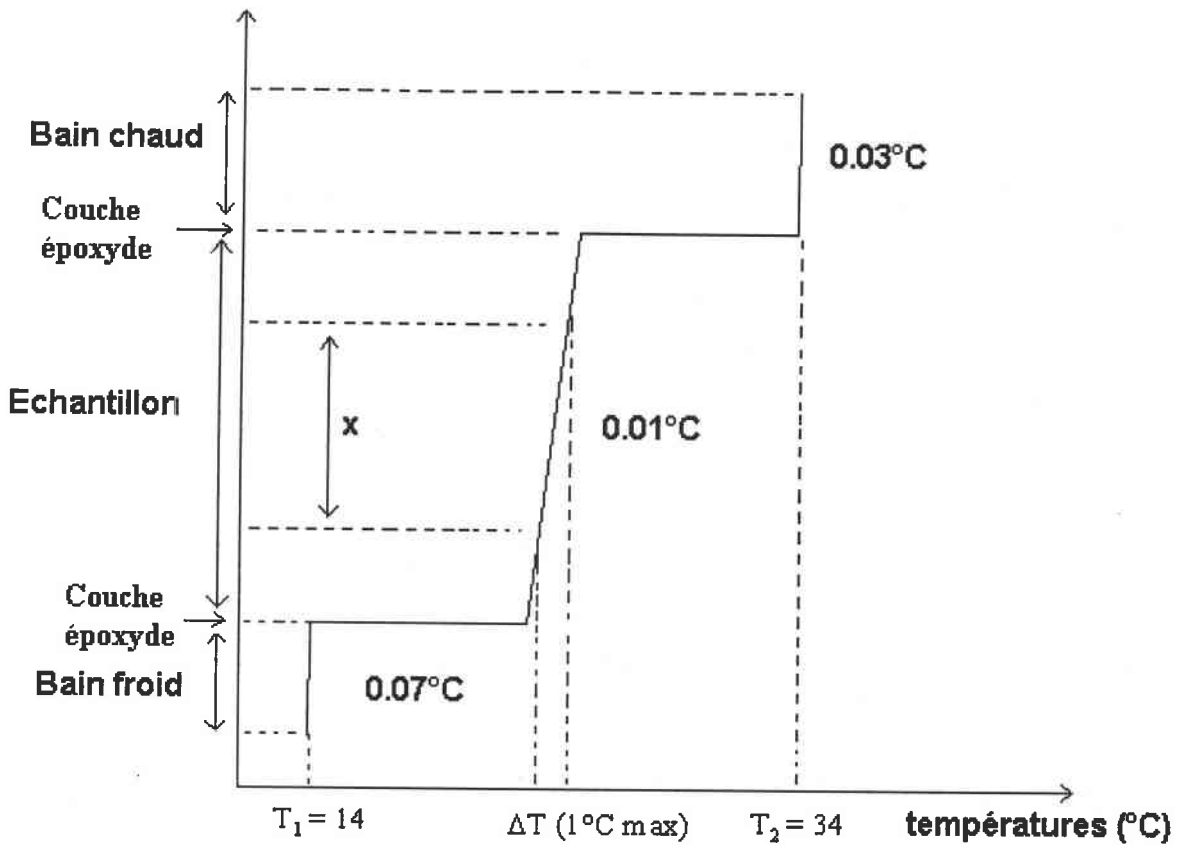


Figure 5-3: Fluctuations de température dans l'appareil lors de l'analyse d'un échantillon d'aluminium ( $x$  = distance entre les deux thermocouples dans l'échantillon)

Dans la littérature, sont décrits des montages utilisant des dynamomètres pour constituer des interfaces reproductibles [2]. Ce type d'approche a finalement été abandonné au profit d'une solution où les thermocouples sont placés dans des trous percés dans l'échantillon (la distance entre deux trous est précise à 0.02 mm près grâce à l'utilisation de cales étalons). On pouvait s'attendre à des variations du  $\Delta T$  mesuré lorsque les thermocouples sont tournés dans leurs sièges. Toutefois, aucune variation significative n'est observée. Ce nouveau montage nous apparaît comme étant le meilleur compromis pour satisfaire une partie des exigences du point (3).

Les plaques d'époxyde jouent un rôle des plus important pour assurer l'homogénéité radiale du flux de chaleur. Leur conductivité thermique est de  $0.2 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  ce qui est similaire à la conductivité des fluxmètres.

Un dernier aspect permettant de satisfaire en grande partie les exigences des points (1) et (2) est lié à la taille des blocs thermostatés qui, en combinaison avec une bonne isolation, réduisent les pertes latérales (typiquement on note un écart de 5% entre flux entrant et flux sortant).

La distance de mesure du gradient n'étant que de la moitié de la hauteur de l'échantillon, l'incertitude liée aux mesures du flux de chaleur est estimée à 2 - 3%.

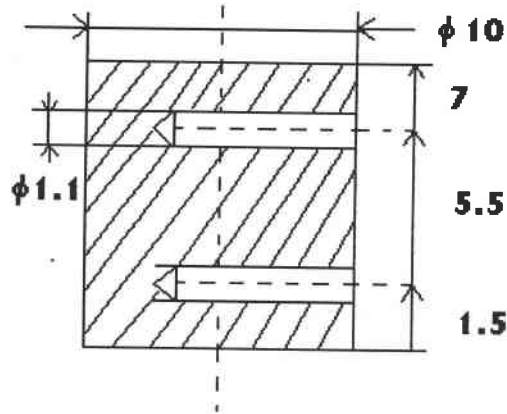


Figure 5-4: Caractéristiques géométriques de l'échantillon.

Lors des mesures, la présence de f.è.m parasites perturbe les résultats. Pour un montage fixe, ces offsets varient peu en quelques heures. Afin de réduire l'erreur sur le gradient de température et de satisfaire ainsi au point (3), les mesures sont faites en utilisant une rampe de gradients de température.

source chaude (°C)	23	21	20	19	16	13	10	7	5
source froide (°C)	27	29	30	31	34	37	40	43	45

Tableau 5-1: Rampe de température entre réservoirs.

La procédure développée n'est vraie que dans l'hypothèse où la variation de la conductivité est linéaire avec la température. Il est connu que la conductivité est elle même fonction de la température (avec une évolution de la forme  $\exp(-T/\text{constante})$ ). La linéarité de tous les rapports  $\varphi/\Delta T$  mesurés justifie l'hypothèse d'une variation linéaire de la conductivité en fonction de la température dans le domaine étudié ( $278 < T(K) < 318$ ).

Le mode opératoire suivi est le suivant:

- fabrication des échantillons avec ou sans champs magnétiques (orientation);
- usinage;
- polissage;
- mise en place de l'échantillon;
- utilisation de pâte conductrice pour améliorer le contact avec les plaques en cuivre;
- mise en place des thermocouples et isolation avec de la laine minérale (Kerlane);
- stabilisation des flux de chaleur ( $\sim 10\text{mn}$ ) pour chaque gradient;
- mesures.

Les valeurs obtenues en appliquant la rampe de température représentent la variation linéaire du flux de chaleur en fonction du gradient de température imposé. A partir de chacun des flux entrant et sortant de l'échantillon (notés flux haut et bas) on obtient deux jeux de données (figure 5-5). La valeur retenue de la conductivité est la moyenne des deux pentes. Cette procédure conduit à une précision dix fois plus grande sur les résultats comparée à des méthodes n'utilisant que quelques points de mesure.

La fiabilité de la mesure est visualisée sur la figure 5-6 par l'écart entre le flux haut et le flux bas qui ne doit pas être trop important. Les deux jeux de données permettent de montrer un mauvais positionnement de l'échantillon et apparaissent comme les valeurs limites de la conductivité. On notera que le flux sortant est typiquement de 0.95 fois le flux entrant.

Remarques:

- des essais de reproductibilité sont effectués en mesurant de de la résine seule. Les trois mesures obtenues sur un même échantillon ont pour valeur 0.210, 0.214 et 0.218  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ;
- l'utilisation de bains pour imposer les températures rend les mesures relativement lentes par rapport aux éléments Peltier, où si on les compare aux méthodes en régime transitoire;
- pour chaque gradient, trois températures sont prises à des intervalles de deux minutes (soit six minutes par gradient). Pour passer d'un gradient à l'autre, il faut respecter en moyenne un délai de 20 minutes avec une température extérieure de 23°C (en été, pour les gradients extrêmes, le temps de stabilisation peut aller jusqu'à 60 minutes).

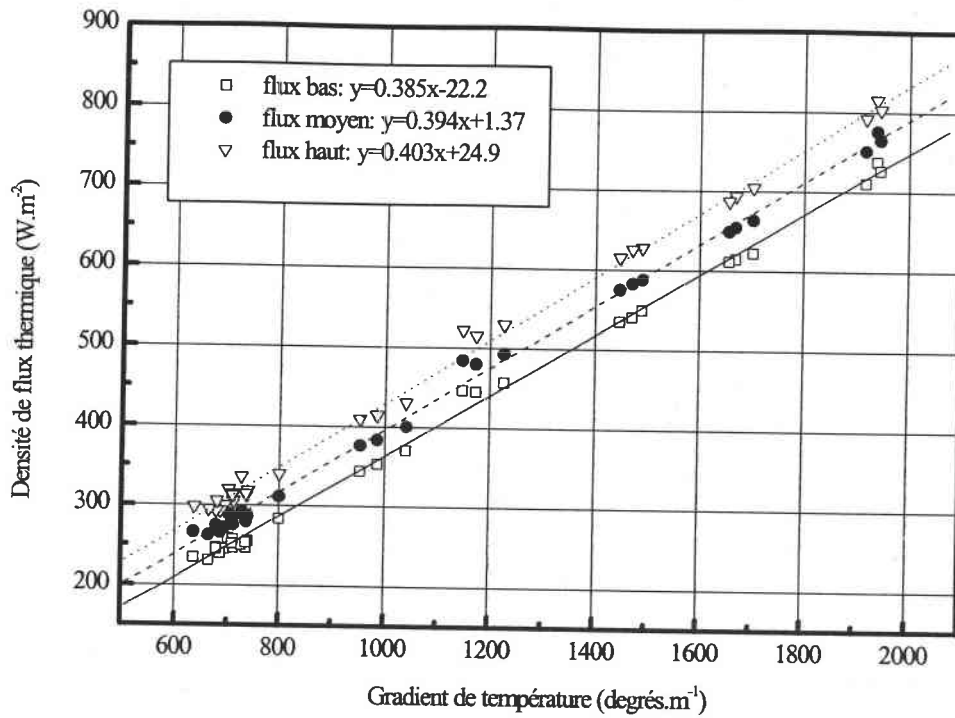


Figure 5-5: Densité du flux de chaleur en fonction du gradient de température pour un composite (20% fibres T300mld, résine ARC 40/32,  $B = 0.75$  teslas,  $HF = 0.9$ ,  $t_{or} = 20$ mn)

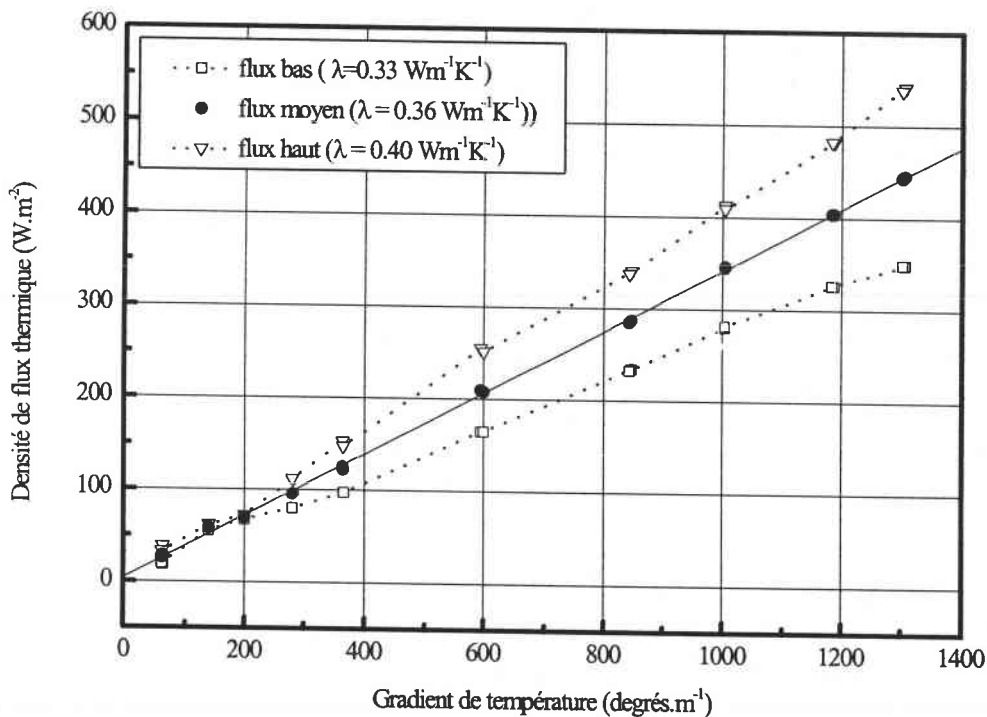


Figure 5-6: Variations de la densité du flux de chaleur en fonction du gradient de température pour un échantillon où une divergence des flux est observée.

(20% fibres T300 mld orientées perpendiculairement à la direction de mesure thermique; résine ARC 40/32;  $B = 0.75$  teslas;  $HF = 0.9$ ;  $t_{or} = 20$  mn).

La conductivité thermique des polymères et composites ayant connu un intérêt accru ces dernières années du fait des besoins en dissipation thermique dans les circuits, échangeurs et autres machines, de nombreux modèles et analyses des processus de transfert ont été développés. La validation des modèles se faisant en fonction des données expérimentales, ces dernières doivent respecter autant que faire ce peut les critères de qualité de Mottram [5]:

(1) la méthode de fabrication et la préparation de l'échantillon test doivent être détaillées;	Voir chapitre 3 et chapitre 5 paragraphe 2;
(2) les données doivent porter sur une large gamme de concentrations volumiques en fibres;	concentration de 0 à 35 % en fibres. Le taux de compactage maximum en T300 mld étant de 42 %;
(3) les conductivités thermiques du polymère et des fibres doivent être connues sur toute la gamme de températures étudiée;	Voir chapitre 1 et chapitre 5 paragraphe 2. La conductivité perpendiculaire aux plans de graphite des fibres n'est pas disponible;
(4) la procédure expérimentale utilisée pour mesurer la conductivité thermique doit être reproductible;	La reproductibilité des mesures est de l'ordre de 2 à 3 %.
(5) l'interface matrice/fibres doit être continue, sans vide;	Des mesures de porosités sont effectuées et discutées par la suite;
(6) le composite doit être constitué uniquement d'une matrice et de fibres en phase dispersée;	Voir chapitre 3;
(7) la taille, la forme, la disposition spatiale des fibres doivent être les mêmes que celles prises en compte dans ce modèle.	Aucun des modèles simples cités par la suite ne sait travailler avec toutes les variations en longueur et en orientation;

Remarque: Afin de satisfaire au point (6), l'utilisation de microbilles pour diminuer la viscosité du mélange et augmenter le taux de charge en fibres [21] est impossible.

### 5-3 Modèles de simulation

La conductivité thermique est une propriété de transport nettement moins étudiée que la viscosité ou les transferts de masse. Les propriétés de transport sont généralement définies par le rapport entre le flux et le gradient créant le transport. Dans le cas d'un transport thermique, le flux est le flux de chaleur  $\varphi$  à travers une aire de section  $A$ . Le gradient de température est dirigé dans le sens des températures décroissantes. La définition de la conductivité thermique est alors celle donnée par Fourier (5-2).

La conductivité thermique va dépendre:

- de la température;
- de la pression;

et pour les composites, des propriétés des inserts:

- géométrie;
- orientation;
- concentration;
- type.

La modélisation de la conductivité thermique d'un composite est plus facile que celle des autres propriétés de transport (viscosité et déformation) car elle est le plus souvent mesurée sur un composite solide - solide statique (dans les autres cas, la géométrie du système varie avec le temps). De nombreux modèles pour prédire la conductivité thermique sont des adaptations de modèles existant pour la viscosité, le module élastique ou les propriétés diélectriques. Les différents modèles se distinguent par la complexité de l'approche. Certains d'entre eux sont présentés par la suite.

Les modèles adaptés de la mécanique, et du module d'élasticité en particulier, sont les plus utilisés. Le module d'élasticité  $E$  est défini avec la même forme mathématique qu'une propriété de transport

$$\sigma = E\varepsilon . \quad (5-8)$$

$\sigma$ : Contrainte appliquée.

$\varepsilon$ : Déformation observée.



On notera l'analogie thermomécanique avec la conductivité thermique

$$\vec{\varphi} = -K \cdot \vec{\nabla T}. \quad (5-9)$$

La géométrie et la charge du composite auront une influence importante sur la conductivité thermique du composite. Les théories ne sont souvent valables que pour un type de charge donné (sphérique, forme irrégulière, disques, fibres courtes, fibres longues...). Seuls les modèles dont la finalité est d'introduire des fibres courtes, distribuées de manière aléatoires ou orientées, seront abordés dans la suite de cette étude.

### 5-3-1 Les modèles limites: série et parallèle

Tout comme en mécanique (modèles de Voigt (5-10) et Reuss (5-11) référencés dans [6]), ces théories fournissent des bornes extrêmes pour lesquelles les fibres courtes sont considérées totalement connectées (5-10) ou totalement indépendantes (5-11). Chaque phase intervenant de façon indépendante.

Remarque: Pour se rapprocher au mieux du modèle de Voigt (borne haute), des échantillons contenant des fibres longues T300 à des taux de 10 et 15% réparties uniformément ont été fabriqués. Il s'est avéré que ces échantillons présentaient trop de porosités pour permettre une mesure reproductible de la conductivité thermique.

La loi des mélanges simples, transposée à la conductivité thermique, intègre des interactions fibre - fibre de manière simplifiée et surestime beaucoup l'effet de la phase dispersée. Elle s'écrit:

$$K_c = K_m(1 - V_f) + K_f V_f \quad (5-10)$$

où:

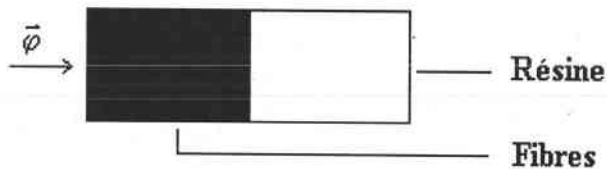
- $K_c$ : conductivité du composite selon l'axe horizontal;
- $K_f$ : conductivité des fibres;
- $K_m$ : conductivité de la matrice;
- $V_f$ : fraction volumique en fibres.



Dans l'expression (5-10), chaque composante contribue à la conductivité thermique du composite à hauteur de sa fraction volumique. On parle dans ces conditions de modèle "parallèle", les matériaux étant associés en parallèle. L'équation (5-10) est similaire à celle fournissant la conductivité électrique équivalente de deux résistances en parallèle.

Considérons à présent le composite comme un matériau homogène dans lequel chaque particule est une entité isolée. Il n'y a aucune connexion entre les particules, chacune d'elles a un effet isolé. Ceci minimise l'effet des fibres sur la conductivité du composite et particulièrement à de faibles concentrations. On parle de modèle de Reuss [6] ou modèle en "série". La configuration est analogue à celle d'un circuit électrique en série, dont on calcule la conductivité équivalente:

$$\frac{K_c}{K_m} = \frac{1}{\left( \frac{(1-V_f)}{K_m} + \frac{V_f}{K_f} \right)} \quad (5-11)$$



Ce modèle (modèle de Reuss [6]), utilisé lors de l'interprétation de notre dispositif expérimental (paragraphe 5-2), est bien adapté aux matériaux constitués de couches successives. Les valeurs prédites sont déjà plus proches des conductivités mesurées pour les composites à fibres courtes.

L'expression (5-11) sert aussi de point de départ aux modèles basés sur l'hypothèse des particules isolées.

### 5-3-2 Modèles phénoménologiques intermédiaires

Une première classe de modèles à considérer utilise la théorie de la percolation. Le comportement prédit par ces modèles est obtenu en fonction de la répartition de la phase dispersée dans l'espace et par l'apparition des "chemins" continus créés par les particules. Ces modèles sont performants pour des systèmes où les coefficients de transports sont très différents (en conductivité électrique des différences de 18 à 22 ordres de grandeurs sont possibles entre la matrice et les inserts). Afin de voir dans quelle mesure ces modèles sont applicables aux matériaux étudiés, deux séries d'échantillons contenant des fibres T300 mld et P55 ont été mesurées. Dans le cas des fibres T300 mld, le rapport des conductivités thermiques ( $K_f / K_m$ ) est de 30. Pour les fibres P55, il est de 550.

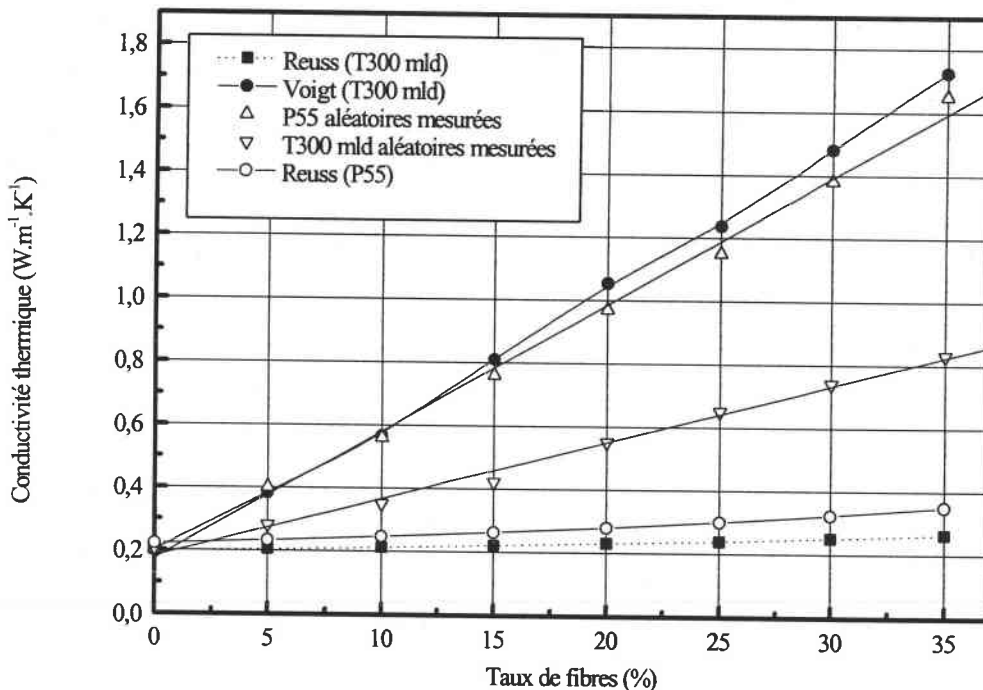


Figure 5-7: Conductivités thermiques mesurées pour des échantillons aléatoires en comparaison avec les modèles série et parallèle (le modèle de Voigt n'est pas représenté pour les fibres P55 suite à un problème d'échelle)  
(T300 mld; P55; ARC 40/32)

Aucune déviation significative du comportement linéaire n'est observée sur la figure 5-7. Or, les seuils de percolation (typiquement entre 25 et 30 % de taux volumique pour des particules sphériques) doivent se situer entre 5 et 15 % dans le cas des fibres utilisées. En conséquence, les modèles basés sur la théorie de la percolation [7] ne seront pas approfondis.

La figure 5-7 peut aussi être comparée à la figure 5-8 extraite de l'article de Bigg [6] et qui donne la conductivité thermique relative d'un composite à base de particules sphériques de haute conductivité. On s'aperçoit que dans les deux cas, l'évolution de la conductivité thermique est similaire en dépit du facteur de forme des fibres qui est de 23 pour les T300 mld et de 10 pour les P55. Pour 25 % de charge, les gains en conductivités relatives restent inférieurs à 2 malgré l'ajout de particules conduisant 1000, 550 et 30 fois mieux la chaleur que la matrice.

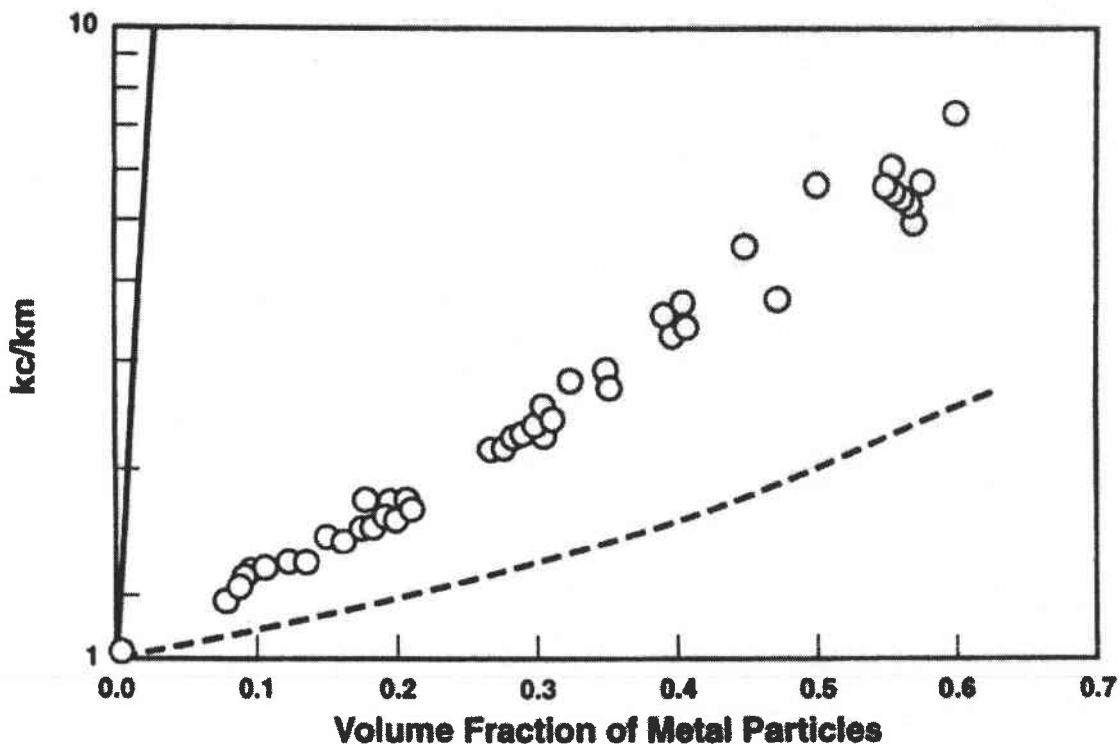


Figure 5-8: Conductivité relative en fonction de la fraction volumique pour des particules sphériques métalliques et encadrée par des modèles limites [6].

Remarque: Le but de ce travail est moins de discuter la modélisation des grandeurs thermiques des matériaux composites que de faire des mesures à une précision suffisante pour pouvoir détecter des variations de structure. On peut s'attendre à rechercher des variations de conductivité thermiques bien inférieures au facteur 2 évoqué ci dessus.

Une autre catégorie de modèles utilise une évaluation de la somme statistique des perturbations autour de chaque particule afin d'obtenir la conductivité thermique moyenne du

matériau. Un exemple de ce type d'approche est donné par Torquato [8]. La conductivité thermique d'un composite biphasé est exprimée dans ces modèles sous forme d'un développement en série de  $\frac{K_f - K_m}{K_m}$ . On obtient:

$$\frac{K_c}{K_m} = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} A_n \left[ \frac{(K_f - K_m)}{K_m} \right]^n \quad (5-12)$$

où les coefficients  $A_n$  décrivent l'environnement local.

On s'aperçoit que la série (5-12) peut diverger pour  $\frac{K_f}{K_m} > 2$ . D'une manière générale, on constate que ces modèles sont développés pour des systèmes métalliques multiphasés et difficilement adaptables aux composites fibres courtes de carbone - résine époxyde.

La recherche de modèles mieux adaptés à nos matériaux composites nous a amené à considérer ceux issus de la mécanique des composites à fibres courtes. Compte tenu de la similitude entre les équations (5-8) et (5-9) et du fait que les rapports relatifs en mécanique ( $E_f / E_m$ ) et en thermique ( $K_f / K_m$ ) sont comparables, l'utilisation de ces modèles semble appropriée.

Parmi les modèles prédisant la conductivité thermique d'un matériau composite isotrope, on note deux approches différentes :

- modèle basé sur les équations d'Hashin et Shtrikman [9]. Celui ci est issu du principe variationnel. Seule la limite basse de ce modèle est utilisée. Elle est donnée par:

$$\frac{K_c}{K_m} = \frac{1 + (e - 1)V_f\beta}{1 - V_f\beta} \quad (5-13)$$

avec: 
$$- \beta = \frac{K_f - K_m}{K_f + (e - 1)K_m} \quad (5-14)$$

- e facteur lié à la géométrie de la particule et à son orientation par rapport à la direction du flux thermique (dans le cas de fibres perpendiculaires au flux  $e_1=2+d/l$  et pour des fibres parallèles  $e_2=1+l/d$ ).

Ce modèle apparaît comme une amélioration de celui de Reuss [6] dans lequel les effets des interfaces sont mieux pris en compte.

- la méthode de Nielsen [10]: cet auteur utilise les équations de Kerner [11] améliorées par Halpin et Tsai [14] et décrivant la conductivité d'un système biphasé à l'aide de moyennes locales. Le modèle s'ajuste aux différents types de charge (fibres, billes, whiskers...) à l'aide d'un coefficient A qui dépend de l'orientation et de la forme des particules. En plus des contributions des deux phases en présence à la conductivité thermique, Nielsen prend en compte l'effet du taux maximal de remplissage en fibres  $V_{\max}$  (donné dans des tables). On a alors:

$$\frac{K_c}{K_m} = \frac{1 + (A - 1)BV_f}{(1 - \psi BV_f)}; \quad (5-15)$$

avec

$$\psi = 1 + \frac{(1 - V_{\max})V_f}{V_{\max}^2}; \quad (5-16)$$

et

$$B = \frac{\frac{K_f}{K_m} - 1}{\frac{K_f}{K_m} + A - 1} \quad (5-17)$$

B est appelé facteur d'efficacité des renforts;

Dans le cas de fibres T300mld: -  $V_{\max} = 0.42$ ;

-  $A = 15$  pour une orientation en 3D aléatoire avec un rapport de forme  $l/d$  de 23 (interpolation des valeurs données dans [6]).

Une comparaison de la formule de Halpin et Tsai (4-12) utilisée en mécanique (chapitre 4) pour décrire un composite à fibres courtes parfaitement alignées, avec les équations (5-15) à (5-17) est effectuée. On s'aperçoit que le coefficient A, valable dans le cas d'une orientation isotrope des fibres, correspond à  $1/3$  de  $2(l/d)$ . La formulation de Halpin et Tsai [14] est similaire à celle obtenue par Hashin et Shtrikman [9] par une approche variationnelle.

Nous utilisons également deux expressions données par Hamilton et Crosser [12] et Agari [13] qui comprennent des paramètres expérimentaux.

\* Hamilton et Crosser [12] obtiennent pour des composites à fibres courtes:

$$\frac{K_c}{K_m} = \frac{K_f + NK_m - NV_f(K_m - K_f)}{K_f + NK_m + V_f(K_m - K_f)} \quad (5-18)$$

où N est une constante empirique caractéristique de la géométrie des inserts.

\* Agari et Al. [13] quant à eux introduisent une moyenne logarithmique de la conductivité thermique des deux éléments du composite. Ce modèle est retenu parce qu'il contient des paramètres pour prendre en compte la formation de réseaux par les inserts.

$$K_c^n = V_m(C_1 K_m)^n + V_f K_f^{nC} \quad (5-19)$$

- $C_1$  est un terme lié à l'effet des fibres sur la cristallinité et donc à la conductivité de la matrice ( $C_1$  est très proche de 1);
- n est un indice relatif à l'uniformité de la dispersion des fibres (si la dispersion est parfaite,  $n=0$ );
- $C = \log(1 / V_c)$  ( $V_c$  étant la fraction volumique critique d'inserts dans le matériau).

Dans la pratique, n sera pris très proche de 0. L'équation approximée est:

$$\log\left(\frac{K_c}{K_m}\right) = V_f C \log\left(\frac{K_f}{K_m}\right). \quad (5-20)$$

Afin de retrouver nos résultats expérimentaux, nous verrons par la suite qu'il faut prendre  $V_c = 0.0003$  ce qui est très faible. Le modèle semble non approprié aux matériaux composites étudiés.

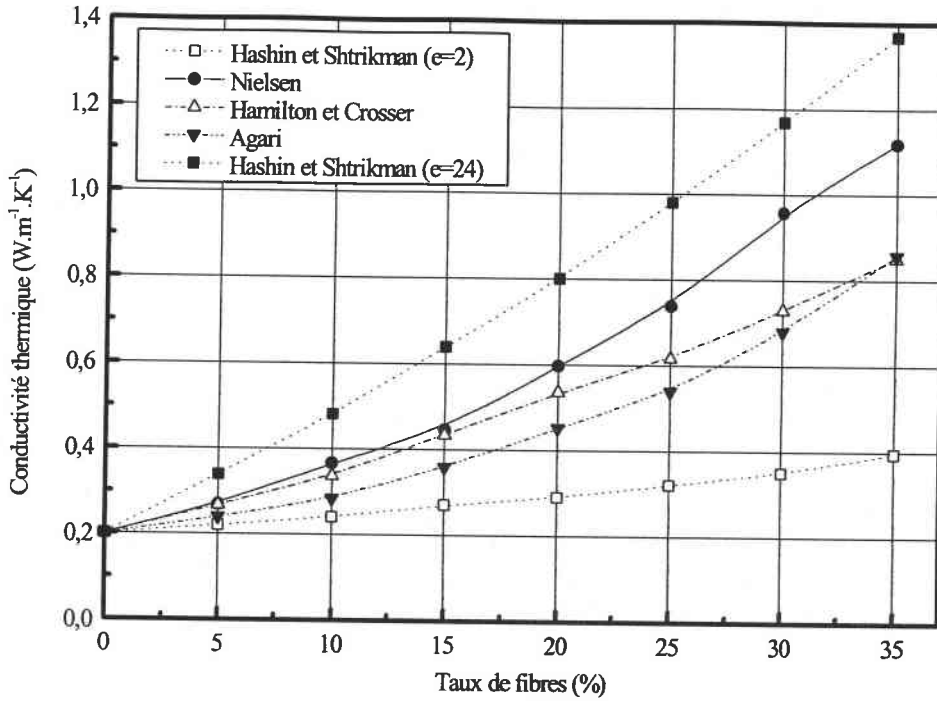


Figure 5-9: Modélisations de la conductivité thermique d'échantillons non orientés constitués de fibres T300 mld dans de la résine ARC 40/32.

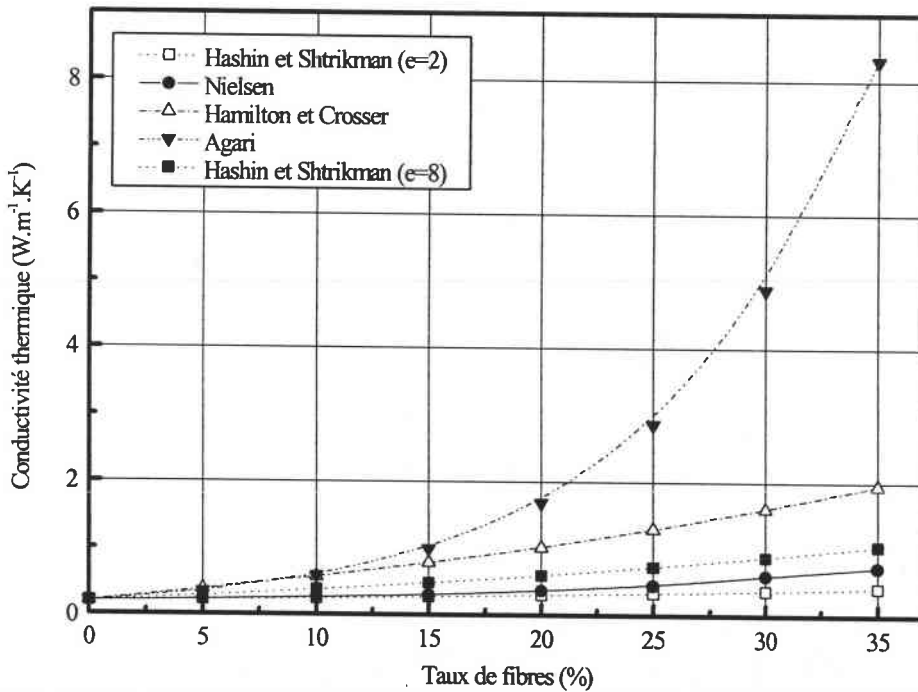


Figure 5-10: Modélisations de la conductivité thermique d'échantillons non orientés constitués de fibres P55 dans de la résine ARC 40/32.

### 5-3-3 Les méthodes d'homogénéisation



a) Principe de la méthode

En se basant sur les propriétés des différents matériaux constituant le composite et en tenant compte de paramètres décrivant sa répartition spatiale, cette méthode estime les propriétés macroscopiques du matériau (matériau homogène équivalent).

L'homogénéisation s'effectue en plusieurs étapes:

- on définit un volume élémentaire représentatif (V.E.R) dans lequel est calculé le comportement du matériau homogène équivalent. Ce V.E.R doit être plus grand que les inclusions (fibres) mais plus petit que le matériau étudié;
- on établit les relations entre les gradients de températures locales  $G_t$  et les gradients macroscopiques  $G_t^m$  ou entre les densités de flux locales  $\phi$  et les densités de flux macroscopiques  $\Phi$  (étape de localisation).
- $\Phi^m$  et  $G_t^m$  étant les valeurs limites, les flux de chaleur et les gradients locaux moyens doivent vérifier:

$$\Phi^m = \langle \phi_i \rangle \text{ et } G_t^m = \langle G_{t_i} \rangle \quad (5-21)$$

pour un matériau constitué de  $i$  phases (étape d'homogénéisation).

b) Le traitement de l'inclusion (fibre) (Eshelby [15])

De nombreuses théories sont spécifiques à un arrangement géométrique particulier des fibres ou sont limitées à certains constituants présents à de faibles fractions volumiques. Ces limitations ne s'appliquent pas à la théorie de la conduction d'Eshelby [15] dont nous rappelons les hypothèses:

- l'inclusion (la fibre) est de forme elliptique;
- un solide homogène supposé infini divisé en deux parties, l'inclusion  $L$  et la matrice  $M$ ;
- l'inclusion possède les mêmes propriétés thermiques que le milieu infini mais subit un gradient libre de température  $\overline{G_t^T}$ .

Les étapes de cette méthode sont:

- isoler l'inclusion de la matrice;
- créer un gradient thermique libre  $\overline{G_t^T}$  dans  $L$ ;

- insérer à nouveau l'inclusion L dans la matrice M ce qui nécessite d'imposer un gradient  $-\bar{G}t^T$  à L. Il en résulte un gradient thermique contraint  $Gt^c$  dans L avec:  $\bar{G}t^c = \bar{S} \cdot \bar{G}t^T$  (5-22)

où  $\bar{S}$  est le tenseur d'Eshelby d'ordre deux, défini dans la figure 5-11.

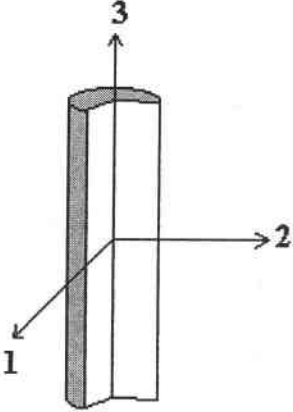
<p>Dans le cas d'une fibre dont l'axe principal est confondu avec l'axe (3) d'un repère orthonormé le tenseur S d'Eshelby s'écrit:</p> $S_{11} = S_{22} = \frac{1}{4} l_1$ $S_{33} = 1 - 2S_{11}$	
$l_1 = \frac{2l}{(l^2 - 1)^2} \left( \frac{1}{3} (l(l^2 - 1)^2 - \cosh^{-1} l) \right)$	<p>avec l le rapport de forme de la fibre (= longueur / diamètre).</p>

Figure 5-11: Tenseur d'Eshelby d'ordre deux.

La densité de flux de chaleur dans l'inclusion équivalente sera

$$\bar{\phi}_{\text{fibre}} = \bar{K}_{\text{Matrice}} (\bar{G}t^c - \bar{G}t^T) \quad (5-23)$$

le gradient étant égal au gradient contraint moins le gradient thermique libre.

### c) La méthode de l'inclusion équivalente (figure 5-12)

Le but de cette méthode est de se ramener au cas précédent. Pour cela, la perturbation du flux liée à l'hétérogénéité thermique est simulée par une fibre (inclusion) subissant un gradient libre  $\bar{G}t^T$ .

On se place dans un milieu homogène infini de conductivité  $\bar{K}_M$  contenant une fibre L de conductivité  $\bar{K}_f$  et on cherche à connaître la perturbation du flux de chaleur appliqué provoquée par la présence de la fibre.

La procédure suivie est identique à celle développée précédemment pour le traitement de l'inclusion mais on y ajoute une étape supplémentaire dans laquelle on applique un flux de chaleur  $\bar{\phi}^p$  au matériau. Le gradient  $\bar{G}t^p$  se superpose alors aux gradients déjà présents dans l'inclusion.

Si  $\bar{\Phi}$  et  $\bar{G}t$  sont les flux de chaleur et gradients thermiques imposés à l'infini, la fibre engendre une perturbation  $\bar{\phi}^p$  de la densité de flux et  $\bar{G}t^p$  du gradient. Ainsi dans chacune des phases (fibre et matrice) on peut écrire:

$$\text{pour la fibre:} \quad \bar{\Phi} + \bar{\phi}^p = \bar{K}_f(\bar{G}t + \bar{G}t^p); \quad (5-24)$$

$$\text{pour la résine:} \quad \bar{\Phi} + \bar{\phi}^p = \bar{K}_M(\bar{G}t + \bar{G}t^p). \quad (5-25)$$

Si maintenant on applique le gradient libre à la fibre, ces équations de comportement deviennent:

$$\text{pour la fibre:} \quad \bar{\Phi} + \bar{\phi}^p = \bar{K}_M(\bar{G}t + \bar{G}t^p - \bar{G}t^T); \quad (5-26)$$

$$\text{pour la résine:} \quad \bar{\Phi} + \bar{\phi}^p = \bar{K}_M(\bar{G}t + \bar{G}t^p). \quad (5-27)$$

Afin que les densités de flux et les gradients soient identiques dans les deux systèmes, il faut vérifier que:

$$\bar{K}_f(\bar{G}t + \bar{G}t^p) = \bar{K}_M(\bar{G}t + \bar{G}t^p - \bar{G}t^T) \quad (5-28)$$

$$\text{avec: } \bar{G}t^p = \bar{S} \cdot \bar{G}t^T.$$

On arrive donc à:

$$\bar{G}t^T = [(\bar{K}_M - \bar{K}_f)\bar{S} - \bar{K}_M]^{-1}(\bar{K}_f - \bar{K}_M)\bar{G}t. \quad (5-29)$$

Le gradient, donné par (5-31) dans chacune des inclusions suppose que la fibre soit dans un milieu infini ayant les propriétés de la matrice. Cela limite la validité du modèle aux très faibles concentrations en fibres.

Une expression de ce modèle en régime non dilué est donnée par Withers et al. [16] qui considèrent une perturbation générée dans la matrice par la présence des fibres voisines et appliquée au flux de chaleur.

Dans le cas d'une fraction volumique,  $V_f$ , de fibres, l'expression obtenue est:

$$\bar{K}_C = \left[ \bar{K}_M^{-1} + V_f \left\{ (\bar{K}_M - \bar{K}_f) [\bar{S} - V_f (\bar{S} - \bar{I})] - \bar{K}_M \right\}^{-1} (\bar{K}_f - \bar{K}_M) \bar{K}_M^{-1} \right]^{-1}. \quad (5-32)$$

#### e) Les méthodes autocohérentes (Hill (1963)[17])

Ces modélisations permettent d'augmenter la concentration des inserts dans le matériau composite. Pour cela on introduit un matériau homogène équivalent dont les propriétés sont supposées identiques à celles du matériau réel étudié. Les fibres sont insérées l'une après l'autre dans ce matériau équivalent que l'on soumet à un flux ou à un gradient thermique imposé.

Le tenseur de localisation pour chacune des phases est obtenu à partir de (5-31) en considérant que le matériau entourant l'inclusion a les propriétés du composite.

Dans le cas de N phases, le tenseur des conductivités effectives s'écrit:

$$\bar{K}^* = \bar{K}_M + \sum_{i=1}^N C_i (\bar{K}_i - \bar{K}_M) [\bar{I} + S_i \bar{K}_M^{-1} (\bar{K}_i - \bar{K}_M)]^{-1}, \quad (5-33)$$

avec  $C_i$  la fraction volumique de la phase  $i$ .

La résolution de (5-33) se fait de manière itérative à partir d'une valeur initiale obtenue par exemple par la méthode d'Eshelby [15].

**Remarque:** Dans ces modèles, le milieu extérieur hétérogène est remplacé par un milieu homogène équivalent ce qui place l'inclusion dans un milieu plus conducteur que le milieu réel. De ce fait les gradients de température à l'interface fibres/matrice ne sont pas pris en compte.

## f) Exemples de modèles d'homogénéisation

- Sur la base de l'équation (5-32), Hatta et Taya [18] ont développé leur propre modèle dans le cas de fibres aléatoires et ils aboutissent à:

$$\frac{K_c}{K_M} = 1 + \frac{V_f [(K_f - K_M)(2S_{33} + S_{11}) + 3K_M]}{J}; \quad (5-34)$$

$$J = 3(1 - V_f)(K_f - K_M)S_{11}S_{33} + K_M [3(S_{11} + S_{33}) - V_f(2S_{11} + S_{33})] + \frac{3K_M^2}{(K_f - K_M)}. \quad (5-35)$$

- Choy, Leung et Kowk [19] intègrent l'orientation des fibres en reprenant les hypothèses de Nielsen [12] et d'Eshelby [15]. Ils décrivent la conductivité thermique des matériaux composites à fibres courtes en utilisant une analogie avec un laminé.

Si on se place dans l'un des plans du laminé, on traite le cas d'un composite unidirectionnel dont les conductivités parallèles et perpendiculaires à l'orientation des fibres sont respectivement données par:

$$K_{11}^{\parallel} = \frac{1 + 2.l\mu_1 V_f}{1 - \mu_1 V_f}, \quad (5-36)$$

$$K_{22}^{\perp} = \frac{1 + 0.5\mu_2 V_f}{1 - \mu_2 V_f}, \quad (5-37)$$

avec  $l$  le rapport de forme des fibres et  $\mu_1, \mu_2$  donnés par:

$$\mu_1^{\parallel} = \frac{\frac{K_{11}^f}{K_M} - 1}{\frac{K_{11}^f}{K_M} + 2.l}, \quad (5-38)$$

$$\mu_2^{\perp} = \frac{\frac{K_{22}^f}{K_M} - 1}{\frac{K_{22}^f}{K_M} + 0.5} \quad (5-39)$$

$K_{11}^f$  et  $K_{22}^f$  étant les conductivités parallèles et perpendiculaires des fibres de carbone.

La conductivité thermique du matériau s'obtient en sommant les conductivités des différents plans du laminé en fonction de leurs orientations respectives:

$$K_{11} = \frac{1}{2}(K_1 + K_2) + \frac{1}{2}V_1(K_1 - K_2), \quad (5-40)$$

$$K_{22} = \frac{1}{2}(K_1 + K_2) - \frac{1}{2}V_1(K_1 - K_2), \quad (5-41)$$

avec

$$V_1 = \frac{\lambda^2 \left(1 + e^{-\frac{\lambda\pi}{2}}\right)}{(\lambda^2 + 4) \left(1 - e^{-\frac{\lambda\pi}{2}}\right)}, \quad (5-42)$$

$V_1$  un terme tenant compte de l'orientation,  $\lambda$  le paramètre de Kacir [20] caractérisant le degré d'orientation des fibres dans le matériau (chapitre 2).

- Un autre modèle tenant compte de l'orientation des fibres de manière plus complète est mis en forme par Chen et Wang [3]. Ce travail donne accès à une méthode de calcul du tenseur des conductivités dans le cas d'un composite transversalement isotrope:

$$\bar{K}^* = \begin{vmatrix} K_{11}^* & 0 & 0 \\ 0 & K_{22}^* & 0 \\ 0 & 0 & K_{22}^* \end{vmatrix}, \quad (5-43)$$

avec  $\bar{K}^*$  la conductivité effective.

L'orientation des fibres est à nouveau prise en compte à l'aide du paramètre  $\lambda$  [19].

Les hypothèses essentielles de ce travail [3] sont:

- un composite où les fibres sont réparties de manière statistiquement homogène;
- un corps homogène infini soumis à un flux de chaleur uniforme.

L'expression générale de la conductivité établie est:

$$\bar{K}^* = \bar{K}_M [\bar{I} + V_f \bar{B} (\bar{I} + V_f \bar{E})^{-1}]^{-1} \quad (5-44)$$

avec:  $\bar{I}$  le tenseur identité

$$\bar{B} = (\bar{I} - \bar{K}_M^{-1} \bar{K}_f) (\bar{I} + \bar{S} \bar{K}_M^{-1} \bar{K}_f - \bar{S})^{-1}; \quad (5-45)$$

$$\bar{E} = (\bar{S} - \bar{I}) \bar{B}. \quad (5-46)$$

Par la suite, les tenseurs B et E sont notés A.

Chen et al. [3] définissent encore:

- l'influence de la FDO sur le tenseur A dans deux repères différents:

- \*  $\bar{A}'_{ij}$ : tenseur représenté dans le système de coordonnées locales de l'inclusion;
- \*  $\bar{A}_{pq}$ : tenseur représenté dans le système de coordonnées globales de tout le matériau.

La relation de passage est donnée par:

$$\bar{A}'_{ij} = \bar{R}_{ip} \bar{R}_{jq} \bar{A}_{pq} \quad (5-47)$$

avec:

$$\bar{R}_{ij} = \begin{vmatrix} \cos \theta & \sin \theta \cos \phi & \sin \theta \sin \phi \\ -\sin \theta & \cos \theta \cos \phi & \cos \theta \sin \phi \\ 0 & -\sin \phi & \cos \phi \end{vmatrix} \quad (5-48)$$

$\theta, \phi$ : les angles d'inclinaison et d'azimut caractérisant l'orientation 3D des fibres;

- des tenseurs tenant compte de la répartition volumique moyenne des fibres dans le cas d'une représentation planaire de l'orientation:

$$\langle \bar{A} \rangle = \langle A(\theta, \phi_0) \rangle = \left[ \int_{-\frac{\pi}{2}}^0 A'(\theta, \phi_0) \rho(-\theta) d\theta + \int_0^{\frac{\pi}{2}} A'(\theta, \phi_0) \rho(\theta) d\theta \right] * \left[ 2 \int_0^{\frac{\pi}{2}} \rho(\theta) d\theta \right]^{-1} \quad (5-49)$$

Après différentes étapes de calcul on établit que:

$$K_{11}^* = K_M^{11} \frac{1 + V_f \langle \bar{E}_{11} \rangle}{1 + V_f \langle \bar{E}_{11} \rangle + V_f \langle \bar{B}_{11} \rangle} \quad (5-50)$$

$$K_{22}^* = K_M^{22} \frac{1 + V_f \langle \bar{E}_{22} \rangle}{1 + V_f \langle \bar{E}_{22} \rangle + V_f \langle \bar{B}_{22} \rangle} \quad (5-51)$$

avec  $\langle \bar{E}_{ij} \rangle$  et  $\langle \bar{B}_{ij} \rangle$  les tenseurs moyens définis par (5-49).

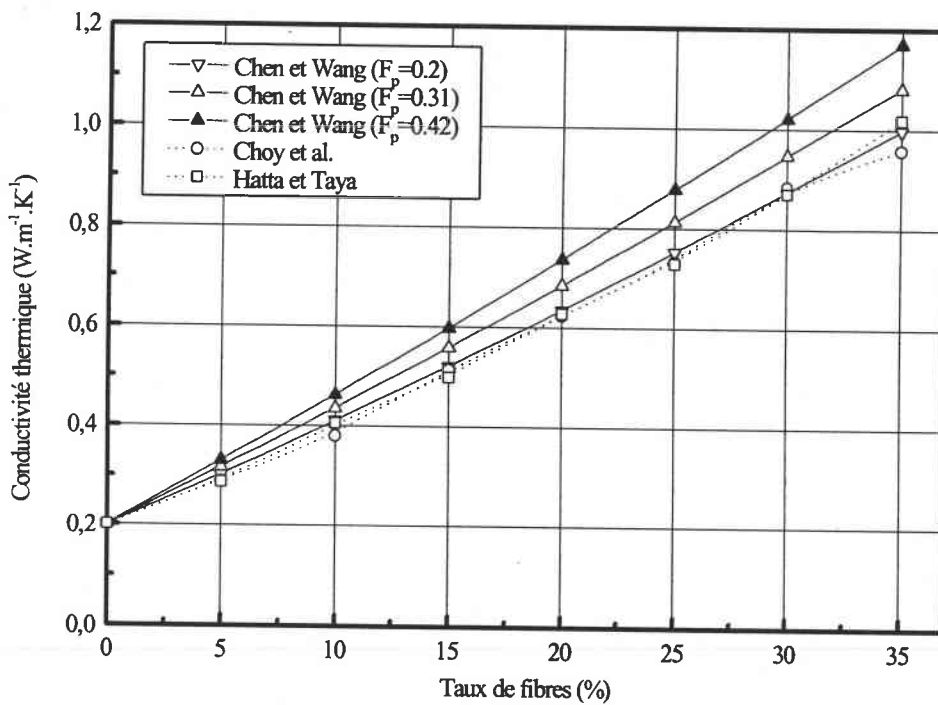


Figure 5-13: Modélisation de la conductivité thermique dans le cas d'échantillons d'orientations aléatoires (Fibres T300 mld, résine ARC 40/32).



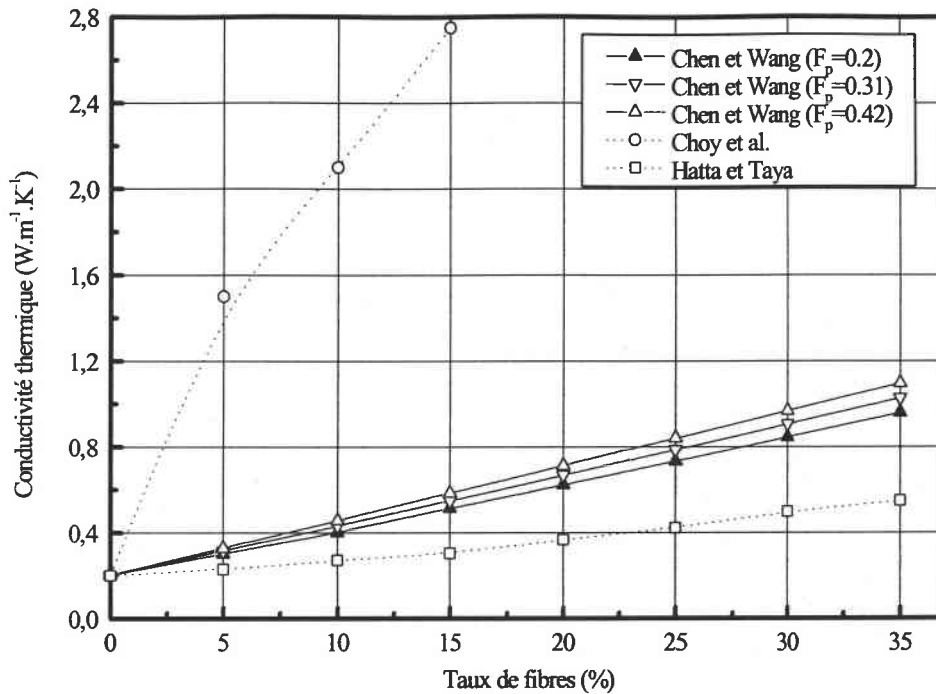


Figure 5-14: Modélisation de la conductivité thermique dans le cas d'échantillons d'orientations aléatoires (Fibres P55, résine ARC 40/32).

#### 5-4 Résultats expérimentaux

Les résultats expérimentaux que nous allons exploiter concernent des composites obtenus à partir de résine ARC 40/32 et vont servir à la séquence suivante:

- analyse de la conductivité thermique en fonction de certaines caractéristiques des fibres;
- comparaison des résultats à un certain nombre de modèles de simulation de la conductivité et discussion;
- évaluation des orientations des fibres déduites des expériences de conductivité thermique et comparaison aux orientations obtenues par analyse d'image.

##### 5-4-1 Analyse thermique d'un composite fibres courtes de carbone - résine époxyde

Porosité de l'échantillon, taux de fibres, facteur d'orientation, longueur des fibres (facteur de forme), traitements de surface sont confrontés aux mesures thermiques.

### a Influence de la porosité

En ce qui concerne l'interprétation des propriétés thermiques, le matériau composite doit être considéré comme formé de trois phases, la résine, les fibres et les cavités.

Dans le souci d'évaluer l'importance des pores, des séries d'échantillons non traités sous champs ont été caractérisées. Les valeurs de la porosité sont données dans le tableau ci dessous (Tableau 5-2) pour des longueurs de fibres variables dans de la résine époxyde ARC 40/32. Les concentrations en fibres sont comprises entre 0 et 20%.

Taux de fibres (%)	Longueur ( $\mu\text{m}$ )				
	200	500	1000	1500	2000
0	3.2	3.2	3.2	3.2	3.2
5	3.6	4.2	4.6	7	5.6
10	4.1	5.1	6.6	7.6	8.1
15	3.9	4.8	6.1	9.2	9
20	5.2	7.1	-	-	-

Tableau 5-2: Evolution de la porosité (%) en fonction de la concentration en fibres de différentes longueurs (sans préparation sous vide; T300 mld; ARC 40/32)

Tout comme pour les échantillons traités sous champs magnétiques lors de l'étude mécanique (chapitre4), on retrouve un accroissement de la porosité avec le taux et la longueur des fibres. Pour les longueurs de 1.5 et 2 mm, la concentration en fibres est limitée à 15%. Au delà, l'obtention d'un matériau homogène est impossible avec notre méthode de préparation.

La croissance de la porosité avec la concentration est due à une mauvaise homogénéisation du mélange fibres/matrice. Il devient de plus en plus difficile à la matrice de mouiller les fibres. Il en résulte des amas de fibres dans lesquels la résine n'a pas pénétré et où l'on trouve des cavités.

L'effet d'une augmentation de la longueur des fibres est similaire à celui d'une augmentation de la concentration. Les fibres étant de plus en plus longues, elles vont

s'emmêler. Il en résulte des amas de fibres dans lesquels la résine ne pénètre pas. D'où une augmentation de la porosité.

Afin de pouvoir quantifier l'effet des pores sur la conductivité thermique, nous avons utilisé le modèle de Hatta et Taya [18] avec les paramètres suivants:  $K_{\text{pores}} = 0.005 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $K_{\text{matériau}} = 0.8 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et pour des pores sphériques (figure 5-15).

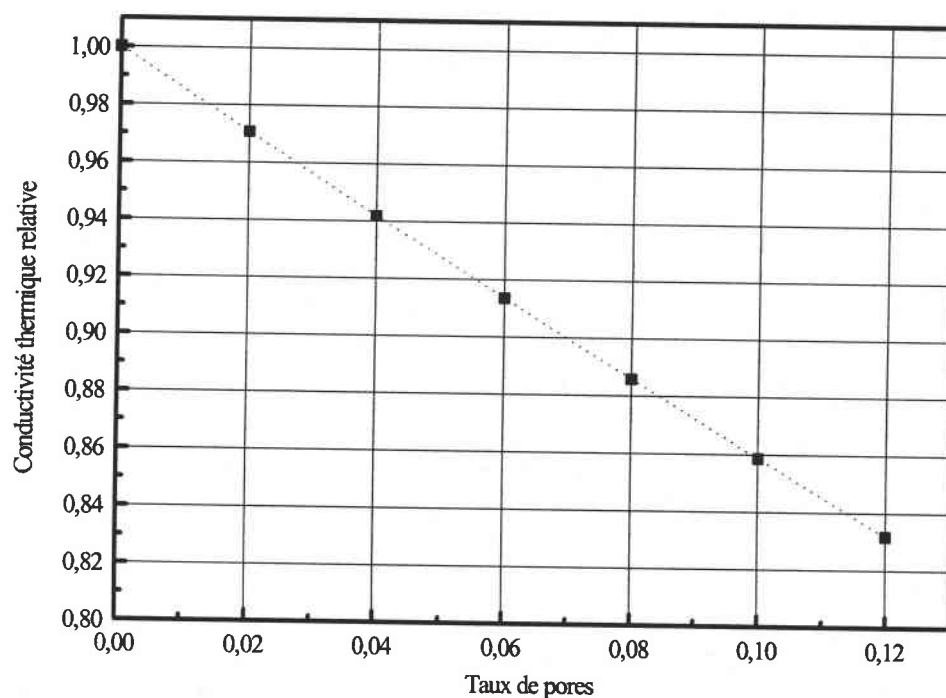


Figure 5-15: Variation de la conductivité thermique en fonction de la porosité calculée selon le modèle de Hatta et Taya [18].

La présence de ces pores a pour effet de réduire la conductivité thermique du matériau composite. L'augmentation de la porosité a pour effet de compenser l'augmentation de conductivité thermique attendue en travaillant à des taux en fibres plus élevés.

A l'avenir, tous les échantillons seront mélangés sous vide afin de minimiser la porosité et d'améliorer les résultats de conductivité thermique.

#### b Variations avec le taux de fibres

Les essais initiaux sont effectués sur une série d'échantillons (série a) non traités. Si on interpole les valeurs expérimentales par une droite et qu'on l'extrapole jusqu'à une

concentration de 100 % en fibres (figure 5-16), nous devrions retrouver la valeur de la conductivité thermique des fibres de carbone utilisées (modèle "série" [6]).

On note que:

- $\lambda = 6,3 \text{ W.m}^{-1}\text{.K}^{-1}$  pour les fibres T300 mld (donnée fabricant);
- $\lambda$  (valeur extrapolée à 100 %) =  $2 \text{ Wm}^{-1}\text{.K}^{-1}$ .

Cet écart laisse penser que la variation de  $\lambda$  en fonction du taux de fibres ne doit pas être linéaire sur le domaine de concentration. On peut estimer qu'à partir de 35 % en fibres,  $\lambda$  doit croître beaucoup plus rapidement (variations identiques à celles du modèle de Chen et Wang [3]).

En effet, à partir d'un certain seuil de concentration, les interactions entre fibres deviennent de plus en plus nombreuses et leur influence se traduit par un accroissement rapide de la conductivité thermique.

Malheureusement, pour des raisons liées à la fabrication des échantillons, les mesures de conductivité thermique se limitent à des taux de charge inférieurs à 30%. Toutefois le taux maximal de compactage se situe, dans le cas des fibres, à environ 42 %.

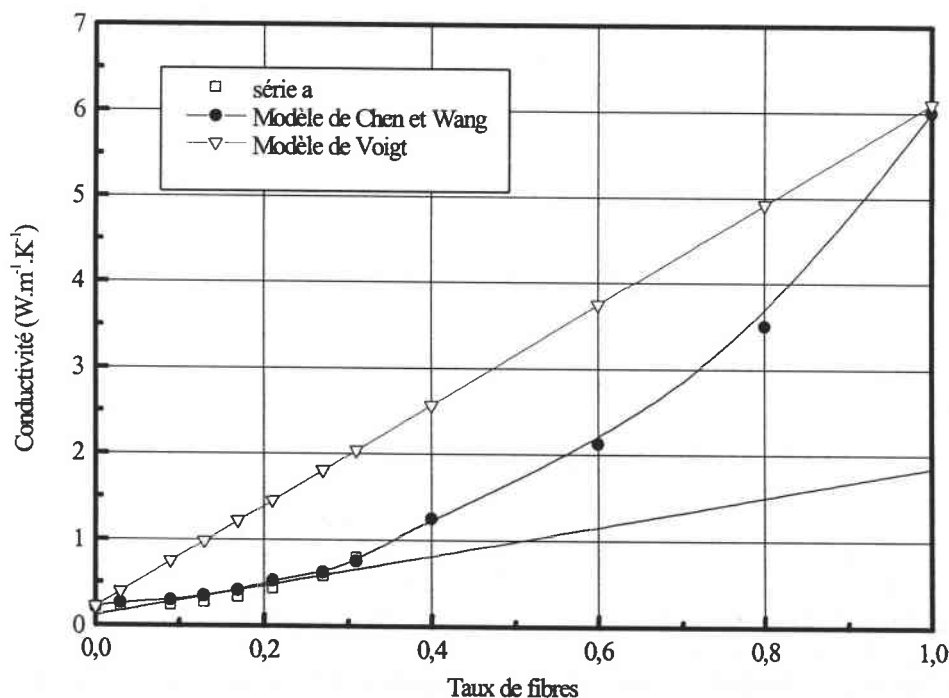


Figure 5-16: Extrapolation de la conductivité thermique sur toute la gamme des concentrations.

### c Variations avec la longueur des fibres

Augmenter la longueur des fibres devrait théoriquement produire des transferts de chaleur plus faciles entre les deux extrémités de l'échantillon (figure 5-17). Néanmoins, l'augmentation de la conductivité n'est que de 10 % pour une augmentation de 300  $\mu\text{m}$  de la longueur des fibres. Chen et Wang [3] calculent également une augmentation de la conductivité de 10 % lorsque la longueur des fibres passe de 200 à 500  $\mu\text{m}$ . L'analyse des résultats expérimentaux montre qu'il n'en est rien dans le domaine des concentrations (0-20%) qui a été investigué (figure 5-18).

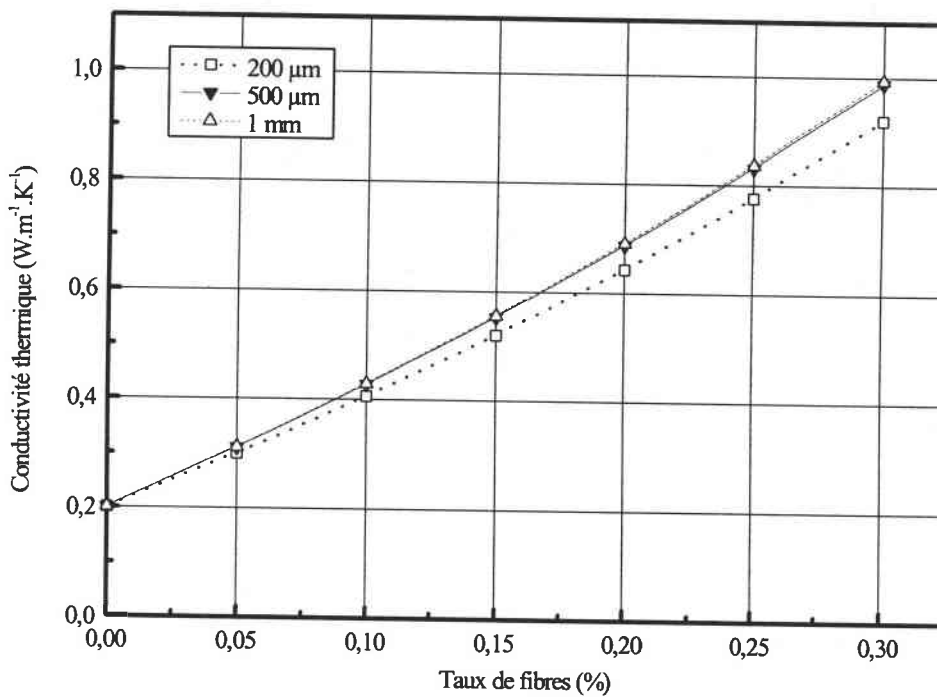


Figure 5-17: Evolution de la conductivité thermique en fonction de la concentration pour différentes longueurs selon le modèle de Hatta et Taya [18].

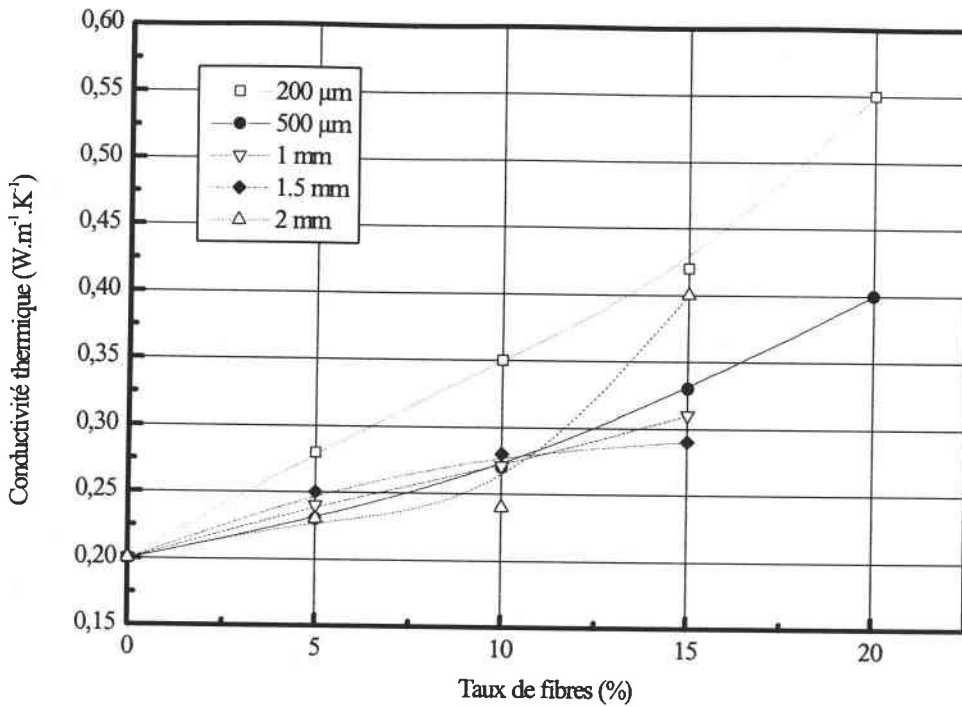


Figure 5-18: Evolution de la conductivité thermique en fonction de la longueur des fibres pour une concentration comprise entre 0 et 20%  
(fibres T300 mld; résine ARC 40/32)

Une étude plus détaillée est obtenue en associant la conductivité thermique à l'orientation de fibres de différentes longueurs pour une concentration de 15% (figure 5-19). Les échantillons constitués de fibres de taille inférieure à 100  $\mu m$  sont obtenus à partir de fibres broyées manuellement. Les fibres de 160  $\mu m$  sont obtenues par broyage industriel (T300 mld). A partir de 500  $\mu m$ , la distribution en longueur des fibres est très étroite car il s'agit de fibres coupées (chapitre 1).

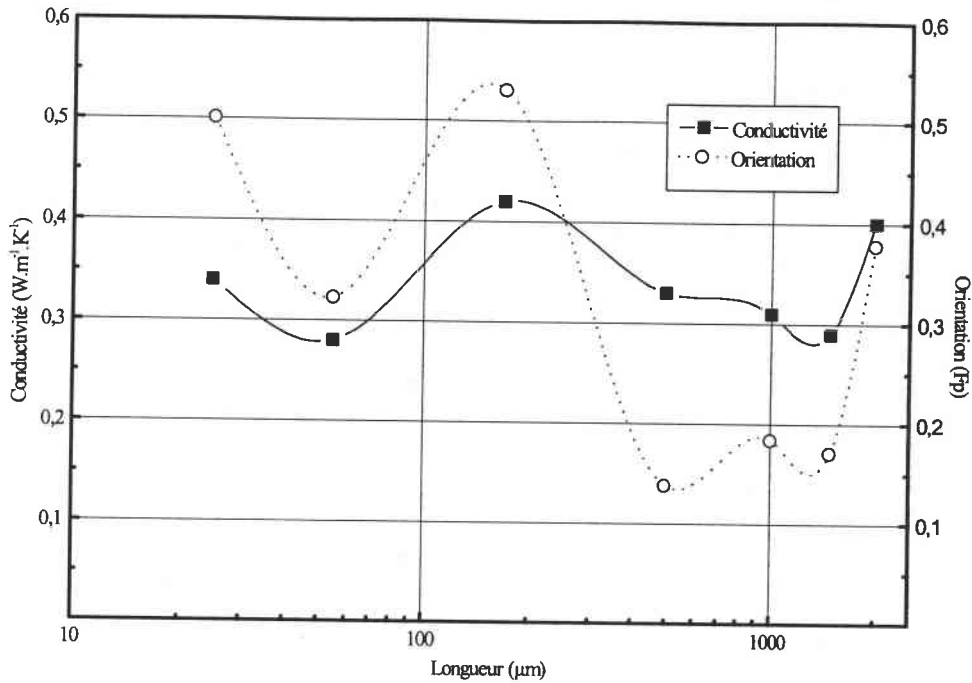


Figure 5-19: Conductivité obtenue et orientation mesurée pour des fibres de différentes longueurs à une concentration de 15%.

L'orientation des fibres de longueurs comprises entre 500 μm et 1.5 mm est inférieure à celle obtenue pour les fibres de 50, 200 et 2000 μm. La courbe des conductivités thermiques suit l'allure générale de la courbe des orientations.

Afin d'évaluer la fiabilité des résultats, on sélectionne une concentration de 15% en fibres (figure 5-19) et on compare les résultats expérimentaux aux valeurs prédites par le modèle de Chen et Wang [3]. Selon ce modèle, pour une orientation constante, la conductivité thermique croît avec l'augmentation du rapport de forme jusqu'à un plateau. Par exemple, pour une orientation  $\lambda = 20$  ce qui correspond à  $F_p = 0.992$  ( $\lambda$  paramètre d'orientation donné par Kacir [20]) et une concentration de 15% en fibres, la conductivité maximale qu'il est possible d'obtenir en jouant sur le rapport de forme est de  $0,99 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ .

La conductivité relative (rapport conductivité mesurée/conductivité théorique) est tracée en fonction du rapport de forme sur la figure 5-20.

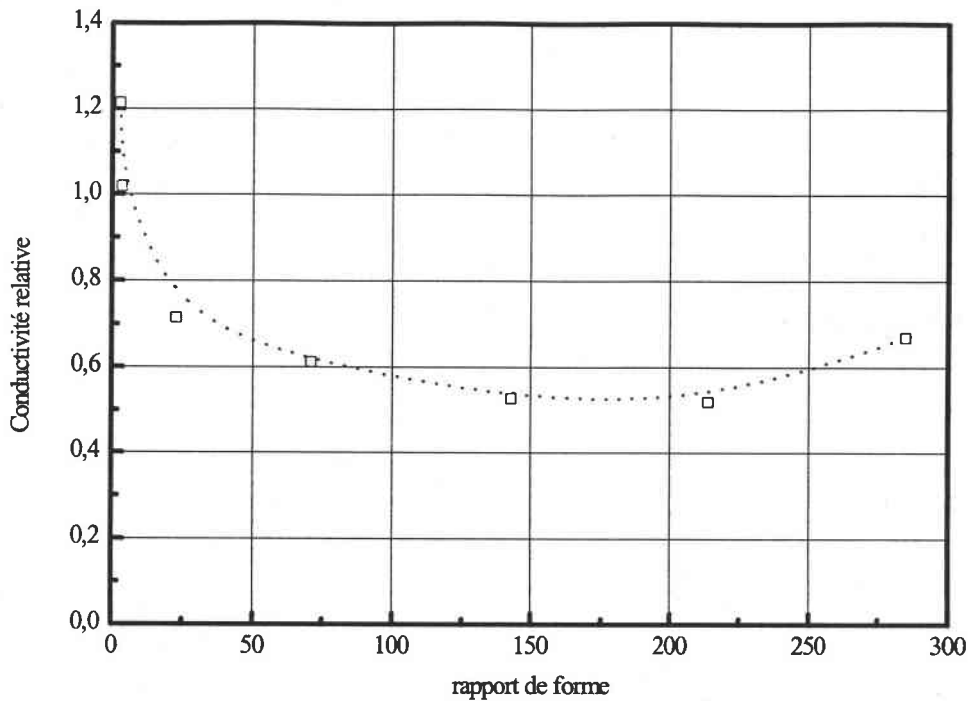


Figure 5-20: Conductivité thermique relative en fonction du rapport de forme pour une concentration en fibres T300 mld de 15%.

Une bonne corrélation entre expérience et théorie se traduit par une conductivité relative égale à 1. La figure 5-20 montre une conductivité relative qui diminue avec l'accroissement du rapport de forme. La conductivité prédite par le modèle de Chen et Wang [3] est supérieure à la conductivité mesurée expérimentalement.

Rappelons que les résultats expérimentaux montrent que la distribution en orientation observée en surface n'est caractéristique de tout le matériau que pour les échantillons traités sous champs. Les facteurs d'orientation mesurés dans les échantillons contenant des fibres de longueurs supérieures ou égales à  $500\mu\text{m}$  sont faibles et caractéristiques d'une orientation par écoulement qui n'est pas constante dans tout le volume.

Une analyse de l'échantillon plus en profondeur (usinage progressif et mesure de la FDO pour chaque couche) montre que le facteur d'orientation initial est surestimé dans le cas des fibres de  $500\mu\text{m}$ , 1 et 1,5mm. Après corrections, les  $F_p$  moyennés sur tout le volume sont utilisés pour calculer la conductivité à l'aide du modèle de Chen et Wang [3]. Les variations de la conductivité relative corrigée sont reportées dans la figure 5-21.



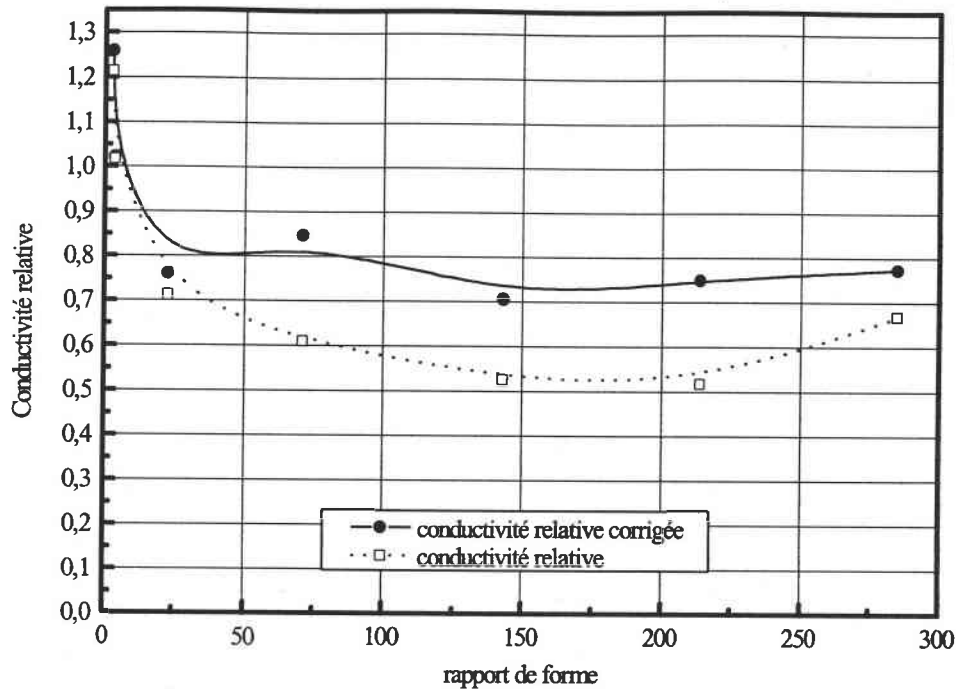


Figure 5-21: Conductivité relative en fonction du facteur de forme après correction de l'orientation pour 15% de fibres T300 mld (résine ARC 40/32).

Si l'on tient compte de la porosité du composite, la conductivité relative se rapproche encore plus de 1. Cependant nous n'avons pas poussé plus loin cette analyse car le modèle de Chen et Wang [3] ne permet pas de calculer l'influence des pores sur la conductivité thermique.

#### d Variations avec l'orientation des fibres T300 mld

Les séries d'échantillons discutées sont:

- une série d'échantillons non traités (série (a)) décrite dans les paragraphes précédents;
- une série d'échantillons dont les fibres sont orientées pour le mieux parallèlement à la direction de mesure de la conductivité thermique (série (b)).
- une série où les fibres sont orientées pour le mieux perpendiculairement à la direction de mesure thermique (série (c)).

Les résultats expérimentaux sont regroupés sur les figures 5-22, 5-23 et amènent les commentaires suivants:

- la série orientée parallèlement à la direction de mesure thermique (série b) est quasiment confondue avec la série non traitée (série a);
- la série (c) est représentée par une courbe où les valeurs de conductivité sont inférieures à celles des échantillons non traités (série a) jusqu'à une concentration de 35%. Au delà, les conductivités sont pratiquement égales;
- l'orientation des fibres de la série (b) est peu différente de celle de la série non traitée (figure 5-23). Par contre les orientations de la série (c) montrent l'influence du traitement si on les compare à celles de l'échantillon non traité.

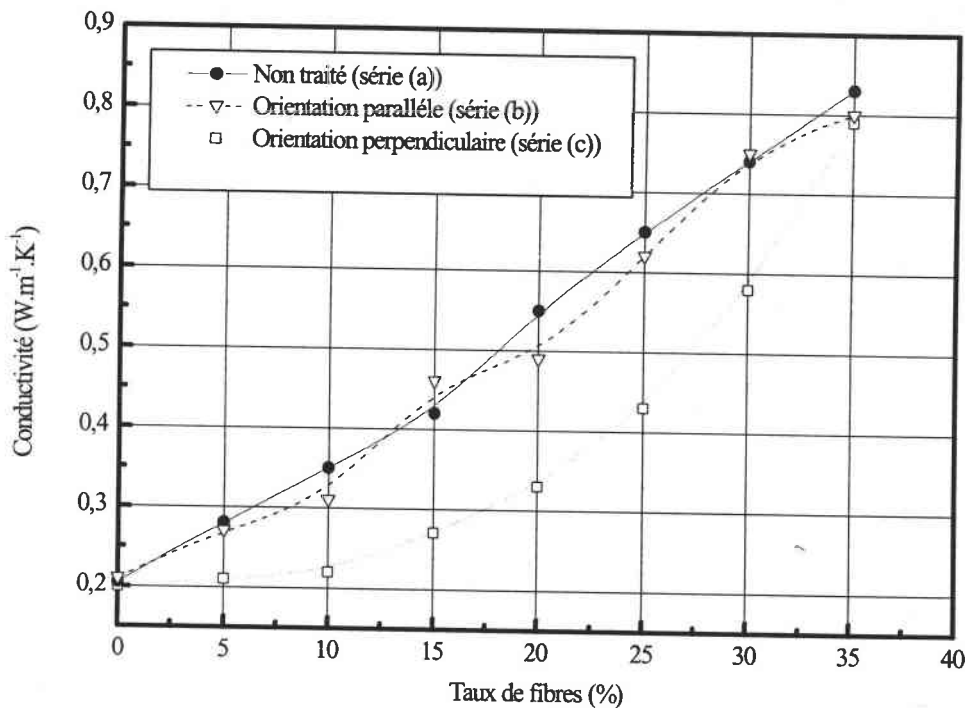


Figure 5-22: Evolution de la conductivité thermique en fonction du taux de fibres pour différentes configurations d'orientation

(Fibres T300 mld; résine ARC 40/32;  $B = 0,75$  teslas,  $HF = 0,9$ ,  $t_{or} = 20$  mm).

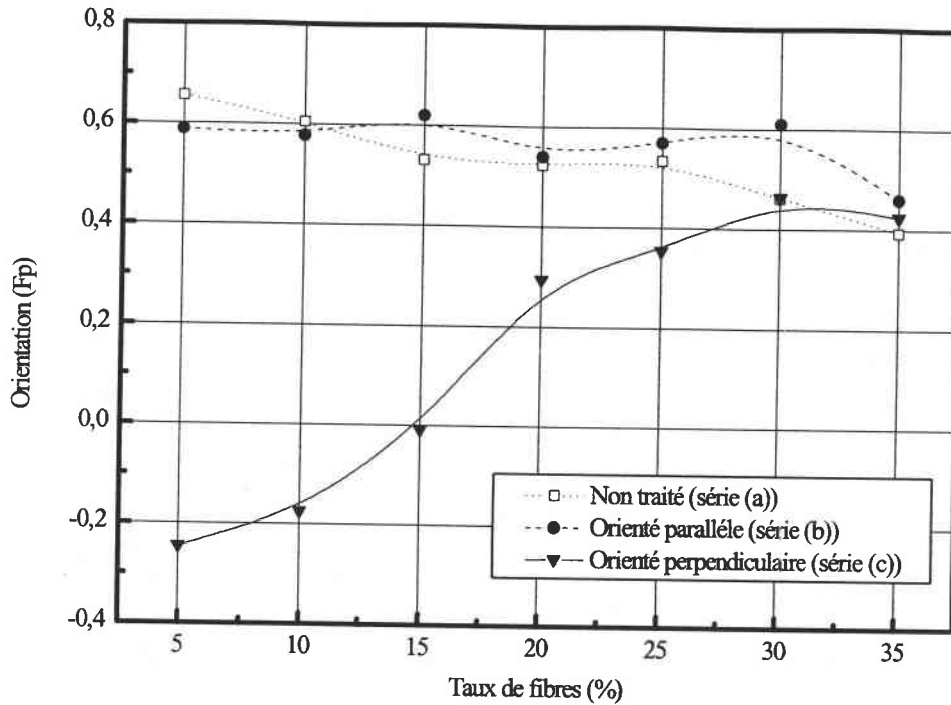


Figure 5-23: Facteurs d'orientation des fibres de carbone pour différentes séries étudiées (Fibres T300 mld; résine ARC 40/32; B = 0.75 teslas; HF = 0.9;  $t_{or}$  = 20 mn).

#### e- Variations en fonction du précurseur des fibres

Pour examiner l'éventuelle influence des précurseurs, les fibres P55 (caractéristiques regroupées dans le tableau 1 du chapitre 1) sont utilisées. Leur conductivité thermique longitudinale est de  $110 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  environ soit 17 fois plus importante que celle des fibres T300mld.

L'examen des données relatives aux fibres P55 (figures 5-25, 5-27) et T300 mld (figures 5-26, 5-28 qui sont des reproductions des figures 5-22 et 5-23) amène les observations suivantes:

- l'allure générale des courbes représentant la conductivité en fonction du taux de fibres est la même pour les deux types de fibres dans le cas de la série (a) (aléatoire) et de la série (c) (orientation des fibres perpendiculairement à la direction de mesure) (figures 5-25 et 5-26);

- pour les P55, la série (b) (orientation des fibres parallèle à la direction de mesure thermique) n'est plus confondue avec la série non traitée (série (a)) (figures 5-25 et 5-26);
- les écarts entre les séries traitées sous champs magnétiques et la série non traitée sont nettement plus importantes que dans le cas des fibres T300mld, ceci est lié à l'orientation des échantillons qui est excellente (figure 5-27) en dessous de 20 % en comparaison de celle des fibres T300 mld (figure 5-28).

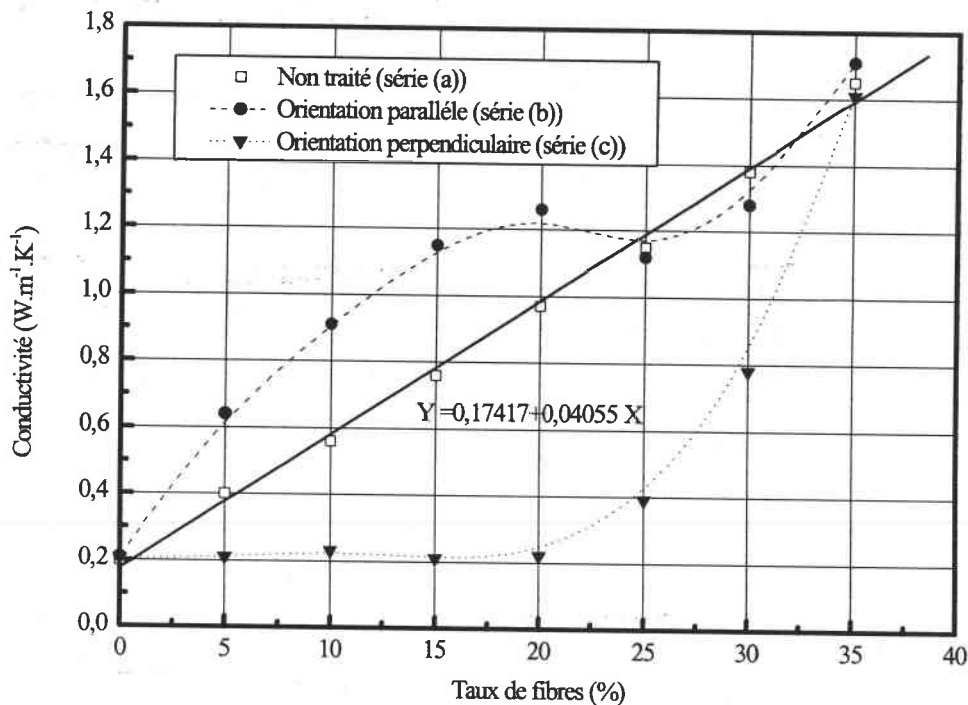


Figure 5-25: Evolution de la conductivité thermique en fonction du taux en fibres P55 pour différentes configurations d'orientation

(P55; ARC 40/32;  $B = 0,75$  teslas,  $HF = 0,9$ ,  $t_{or} = 20$  mm).

**Remarque:** Si l'on extrapole la droite des échantillons non traités à 100% de fibres P55, la conductivité trouvée est de  $4,2 \text{ Wm}^{-1}.\text{K}^{-1}$  soit bien inférieure à  $110 \text{ Wm}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . L'explication est la même que celle proposée pour les fibres T300mld dans le paragraphe (5-3-2-b) c'est à dire une évolution non linéaire de la conductivité thermique en fonction de la concentration en fibres.

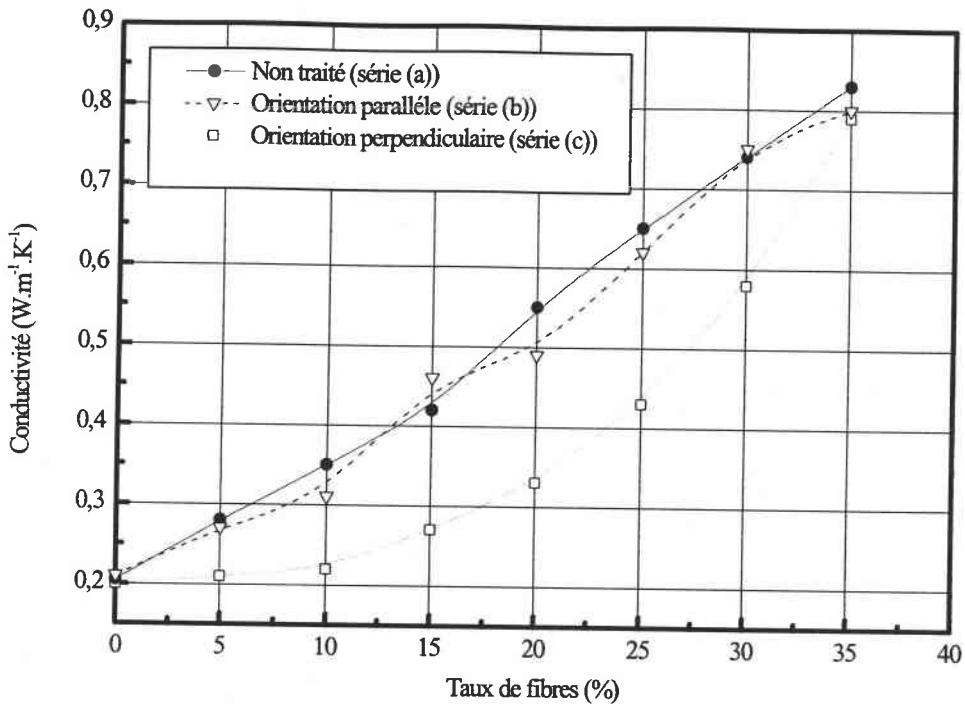


Figure 5-26: Evolution de la conductivité thermique en fonction du taux en fibres T300 mld pour différentes configurations d'orientation (T300 mld; ARC 40/32; B = 0,75 teslas, HF = 0,9,  $t_{or}$  = 20 mn).

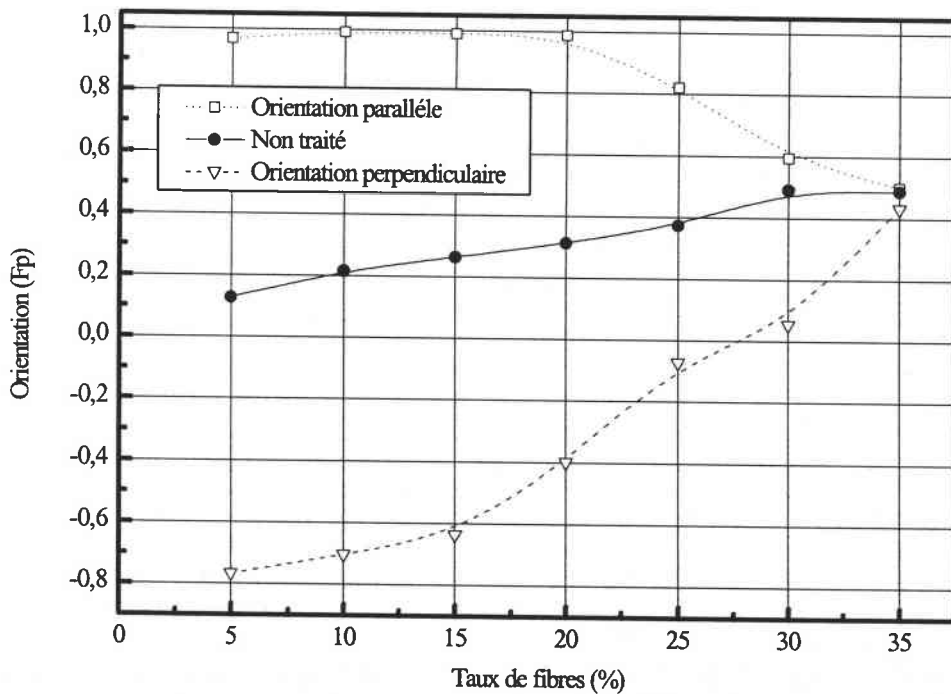


Figure 5-27: Facteurs d'orientation des fibres P55 pour les différentes séries étudiées (P55; ARC 40/32; B = 0.75 teslas; HF = 0.9;  $t_{or}$  = 20 mn).

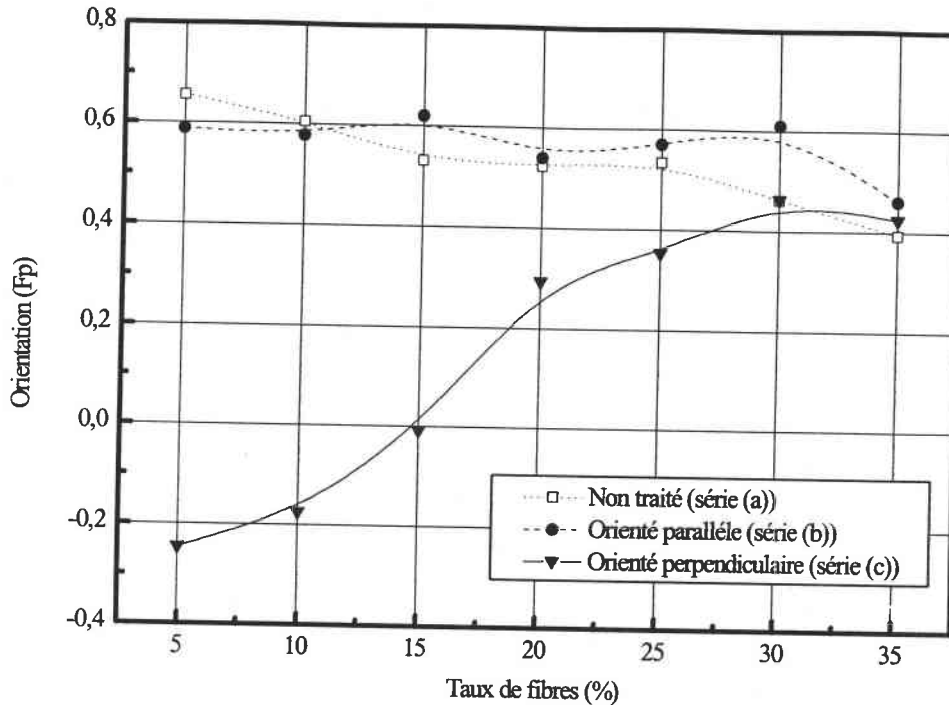


Figure 5-28: Facteurs d'orientation des fibres T300 mld pour les différentes séries étudiées (T300 mld; ARC 40/32;  $B = 0.75$  teslas;  $HF = 0.9$ ;  $t_{or} = 20$  mm).

#### Explications:

La conductivité selon l'axe principal d'une fibre de carbone est meilleure que selon l'axe perpendiculaire. Cette observation est liée à la structure atomique de la fibre. Selon l'axe principal, les liaisons carbone - carbone sont covalentes. Selon l'un des axes perpendiculaires, les liaisons sont du type Van der Waals. Généralement, les matériaux conduisent mal la chaleur dans la direction des liaisons faibles. La structure lamellaire de la fibre contribue également à l'anisotropie de la conductivité thermique. La conductivité  $K_{22}^f$  est alors la moyenne des conductivités perpendiculaires à l'axe principal de la fibre. Pour estimer l'influence du rapport  $K_{11}^f / K_{22}^f$  on utilise le modèle de Chen et Wang [3] avec les paramètres:  $\lambda = 3$ , 20 % de fibres,  $K_{11}^f = 6.3 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  et  $K_{22}^f = 0.63$  ou  $6.3 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ . Les variations de la conductivité du matériau composite  $K_{11}^c$  calculées sont faibles. L'anisotropie des fibres réduit  $K_{11}^c$  de 1.5 % et augmente  $K_{22}^c$  de 8.2 %. Ces variations sont bien plus faibles que celles liées à l'orientation.

Lorsque les fibres sont parfaitement orientées parallèlement à la direction de mesure thermique, elles mettent en jeu toute leur longueur pour assurer la conduction. On obtient alors un matériau où la chaleur se propage bien car il y a le minimum de "barrages" de résine. On note qu'à facteur d'orientation équivalent, les conductivités thermiques mesurées sont identiques indépendamment de la préparation des échantillons.

La figure 5-29 résume de façon simplifiée les différents cas pouvant se présenter en fonction de l'orientation des fibres.

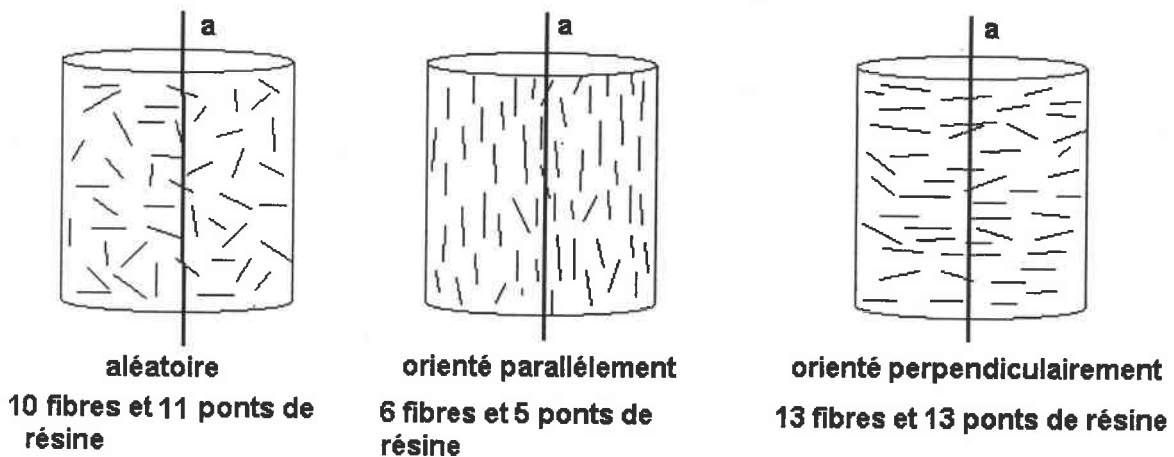


Figure 5-29: Propagation de la chaleur en fonction de l'arrangement spatial des fibres.

L'élaboration d'échantillons cylindriques où les fibres T300 mld sont bien orientées avec l'axe principal n'a pas réussi jusqu'à présent. Des problèmes d'échauffement du matériau lors de l'élaboration en sont la cause. Ces difficultés sont atténuées lors de l'élaboration de la série (c) car la configuration du moule utilisée est mieux adaptée à la dissipation de la chaleur.

#### 5-4-2 Cohérence des résultats expérimentaux avec certaines simulations

Une comparaison expérience - conductivité thermique calculée permet de mettre en évidence les écarts plus ou moins importants entre les deux ensembles de résultats. Elle permet de montrer les limites de certains modèles. La précision de nos mesures de conductivité thermique (erreur de 2 à 3 %) et d'orientation (écart type du  $F_p$  typiquement de 10

%) est suffisante pour constater les désaccords même avec les modèles évolués (Hatta et Taya [18], Choy et al. [19] et Chen et Wang [3]).

Le modèle d'Agari [13] est cité en sachant que les valeurs sont obtenues avec le choix d'un paramètre n'ayant aucune signification.

Les modèles donnant le meilleur accord avec l'expérience sont:

- le modèle phénoménologique de Hamilton et Crosser [12];
- les modèles de type auto - cohérent. Le modèle de Hatta et Taya [18] n'utilise aucune mesure d'orientation. Les modèles de Choy et al. et de Chen et Wang sont basés sur la mesure de l'orientation moyenne des fibres dans l'échantillon (figure 5-29). Cela explique aussi les variations importantes de la conductivité thermique en fonction du taux de fibres calculées avec le modèle de Chen et Wang [3].

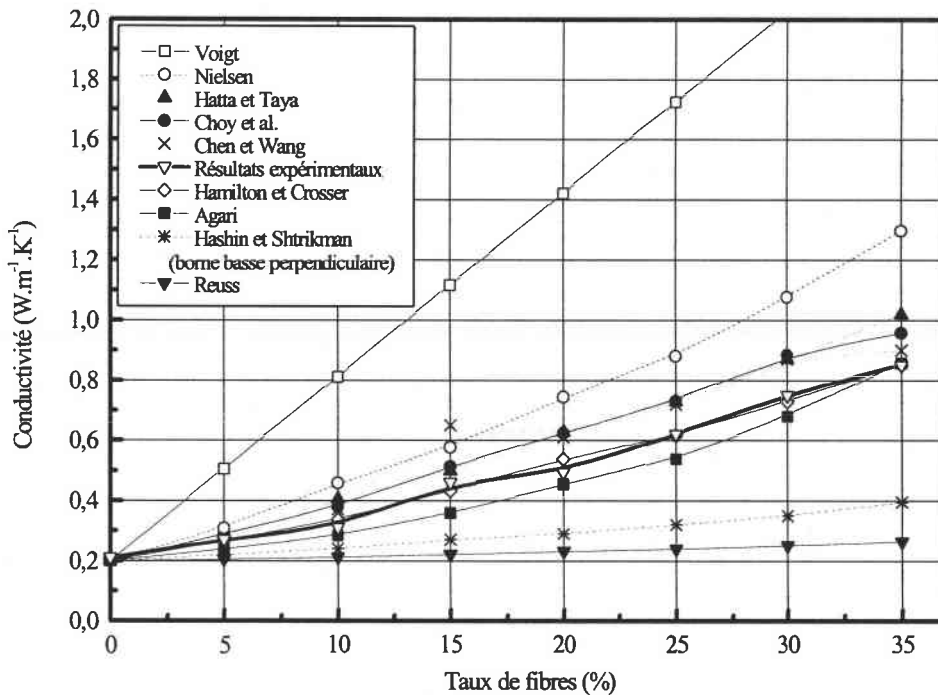


Figure 5-29: Comparaison expérience (série a) - théorie en fonction du taux de fibres (T300mld (200  $\mu$ m); résine ARC 40/32).

#### a- Les modèles phénoménologiques

Parmi les modèles phénoménologiques utilisés, ceux de Reuss [6], Voigt [6], Hashin et Shtrikman [9] donnent les limites des conductivités possibles. Seule une borne du modèle de Hashin et Shtrikman est indiquée.



Les modèles de Reuss et Voigt sont inadaptés aux composites à fibres courtes. Leurs prédictions sont très éloignées de la série (a). On peut en déduire que ni la densité de flux thermique ni le gradient de température ne sont uniformes dans l'échantillon.

La borne inférieure du modèle de Hashin et Shtrikman [9] (amélioration des modèles précédents et conçu pour modéliser la conductivité thermique d'un matériau ayant des inclusions perpendiculaires à la direction du flux thermique) suit mieux l'expérience mais reste tout de même inférieure à la réalité.

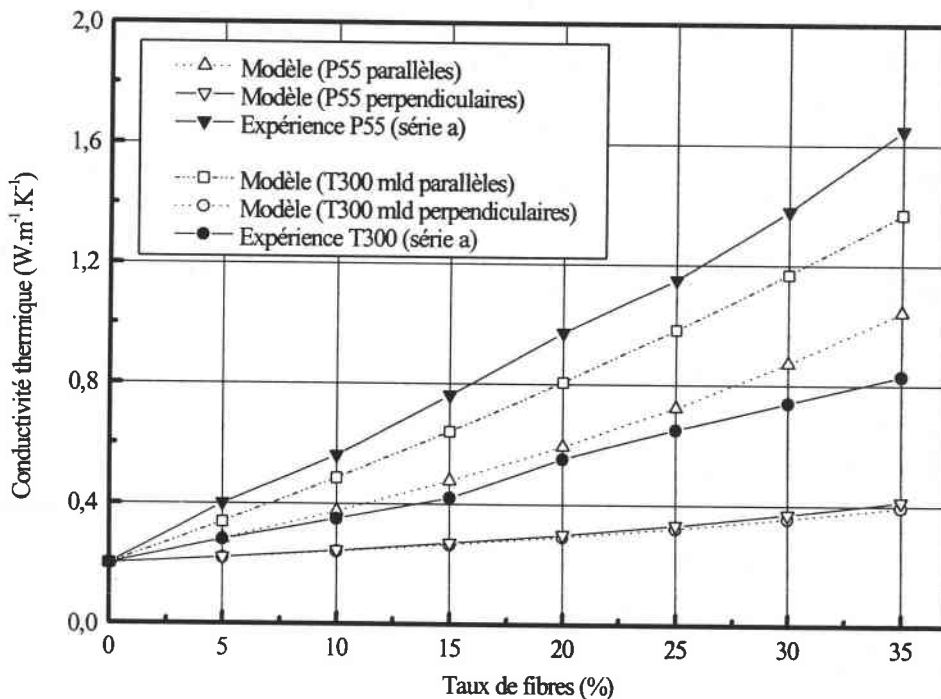


Figure 5-30: Encadrement de la série a par le modèle bas de Hashin et Shtrikman [9] pour des fibres T300 mld et des fibres P55 dans la résine ARC 40/32

On note sur le figure 5-30 que la série a pour les fibres T300 mld est encadrée par les deux courbes de la borne basse du modèle de Hashin et Shtrikman [9]. Néanmoins ce modèle semble peu intéressant du fait que l'écart entre les deux orientations limites est trop important. En ce qui concerne les fibres P55 qui présentent une conductivité très supérieure à la résine mais un rapport de forme inférieur à celui des T300 mld, on constate le modèle bas n'est plus adapté.

Le modèle de Hamilton et Crosser [12] contient un paramètre ajustable  $N$ . Afin que la courbe théorique suit fidèlement l'expérience ce paramètre est évalué à  $N = 16$  à la fois pour les fibres T300 mld et P55. Vu que le choix de ce paramètre n'est pas justifié, le modèle ne semble utile que pour effectuer des extrapolations.

La formulation du modèle de Nielsen [10] est similaire à celle d'Hashin et Shtrikman [9]. Il utilise toutefois des paramètres expérimentaux précis, en l'occurrence, le taux de compactage maximal en fibres  $V_{\max}$  et le paramètre  $A$  qui induit la géométrie et l'orientation de la charge. Dans ce cas précis,  $V_{\max}$  et  $A$  pour des fibres aléatoires, orientées parallèlement et orientées perpendiculairement sont indiquées dans le tableau 5-3.

D'une manière générale, le modèle de Nielsen [10] fournit des valeurs nettement supérieures à la courbe expérimentale pour la série a. Il est adapté aux faibles concentrations et diverge pour les concentrations proches du taux de compactage maximal..

Paramètres de Nielsen	Orientation des fibres		
	aléatoire	parallèle	perpendiculaire
$V_{\max}$	0.42	0.5	0.5
$A$	15	46	0.5

Tableau 5-3: Valeurs de  $V_{\max}$  et  $A$  pour des fibres T300 mld ( $l/d = 23$ )

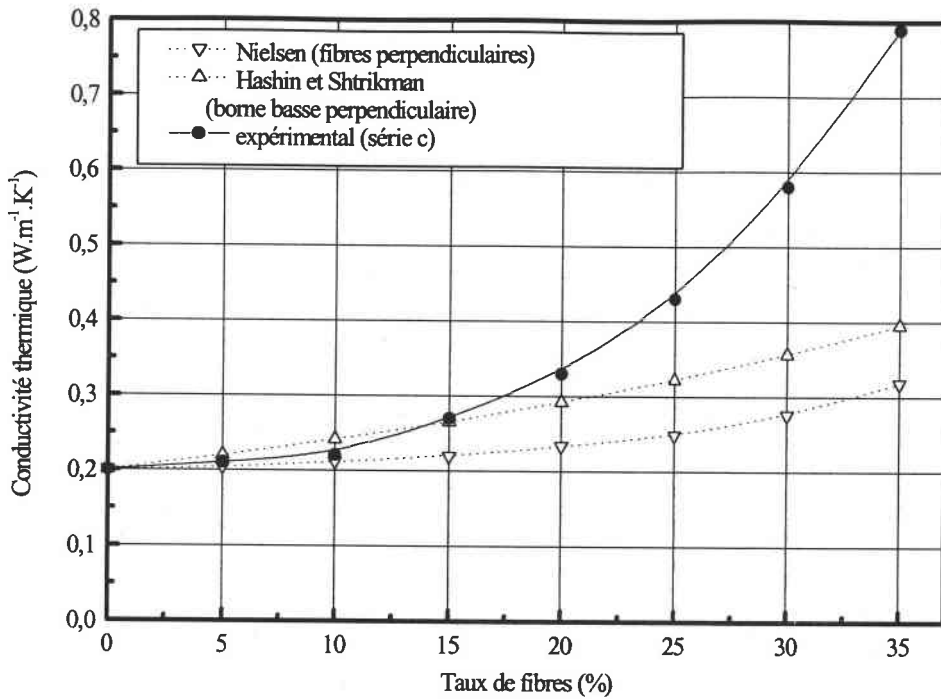


Figure 5-31: Comparaison de la série c pour des fibres T300 mld (ARC 40/32) avec les modèles de Nielsen [10] et d'Hashin et Shtrikman [9] adaptés aux orientations perpendiculaires

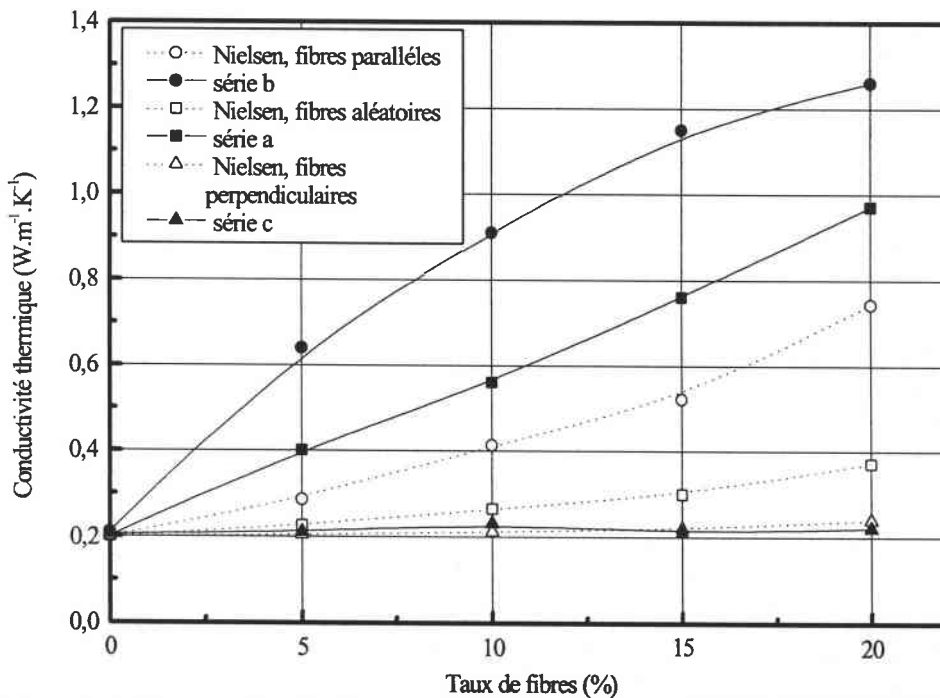


Figure 5-32: Comparaison du modèle de Nielsen [10] avec les différentes séries expérimentales obtenues avec des fibres P55 dans la résine ARC 40/32

La figure 5-31 montre que pour des concentrations en fibres inférieures à 20 %, les modèles de Nielsen et Hashin - Shtrikman décrivent bien les données expérimentales. Au delà de ce taux, l'orientation des fibres évolue rapidement vers une orientation aléatoire. Par conséquence, ces échantillons ne peuvent plus être décrits dans le cadre de ce modèle. Pour cette raison, la discussion des composites fabriqués à partir des fibres P55 se limite aux concentrations inférieures à 20 % (figure 5-32).

Le modèle de Nielsen [10] est en bon accord avec les mesures de la série c mais il sous estime les conductivités thermiques mesurées pour les séries a et b pour les fibres très conductrices.

### b- Les modèles d'homogénéisation

Tous les modèles cités sont issus du modèle d'homogénéisation d'Eshelby [15]. Le modèle de Hatta et Taya [18] est un cas particulier, qui s'applique à des situations précises (fibres parfaitement orientées, aléatoires...).

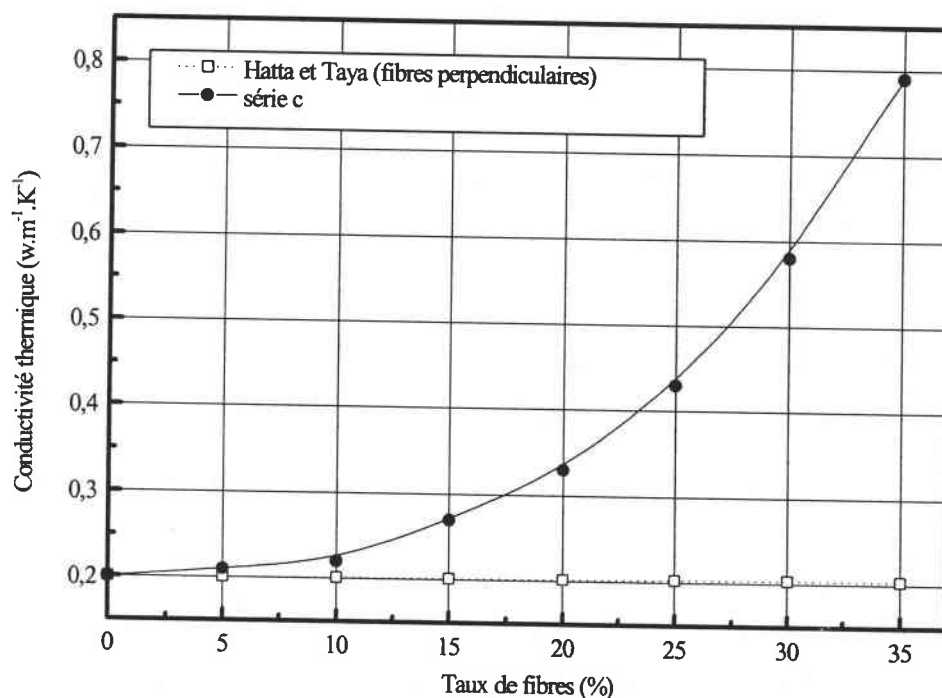


Figure 5-33: Comparaison de la série c pour les fibres T300 mld (ARC 40/32) avec le modèle de Hatta et Taya [18] pour des fibres orientées perpendiculairement

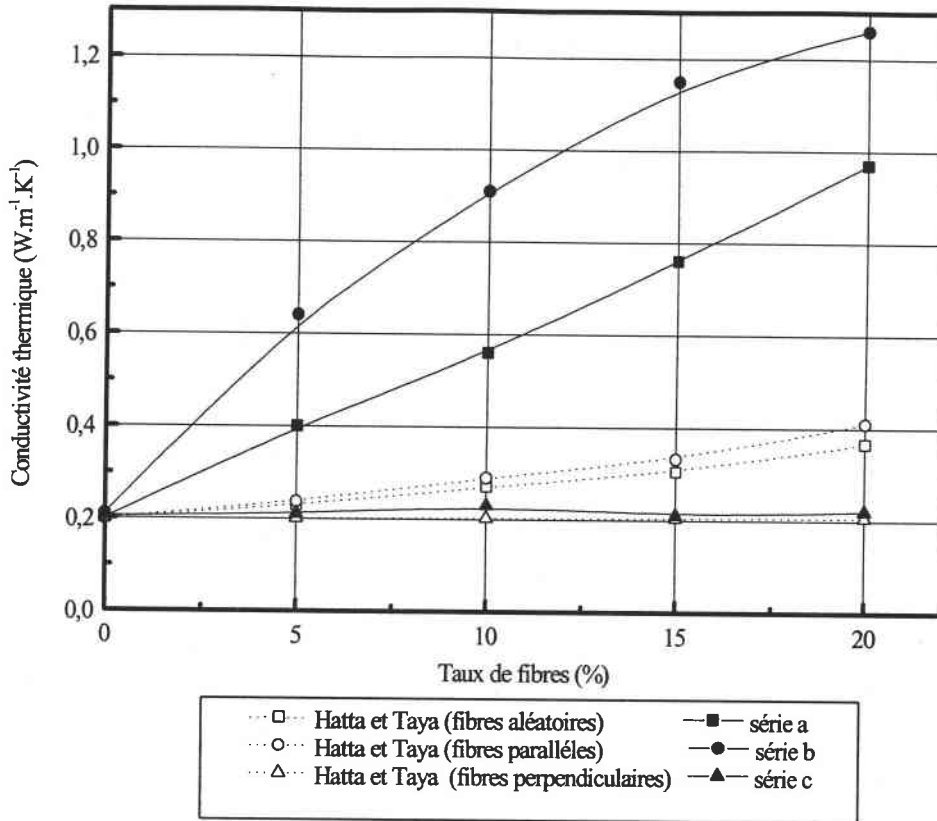


Figure 5-34: Comparaison des mesures pour les fibres P55 (ARC 40/32) avec le modèle de Hatta et Taya [18]

La comparaison des figures 5-33 et 5-34 montre que la conductivité thermique est très sensible à l'orientation des fibres. Dans le cas des fibres orientées perpendiculairement, la très bonne orientation des fibres P55 jusqu'à une concentration de 20 % donne un accord parfait avec le modèle. La chute de l'orientation à partir de 10 % pour les fibres T300 mld augmente la conductivité thermique et entraîne l'écart observé avec la théorie.

Concernant la modélisation de la conductivité thermique pour les composites aléatoires et contenant des fibres P55 parallèles (au flux de chaleur), ce modèle est en désaccord avec les résultats expérimentaux.

Le modèle de Chen et Wang [3] se distingue des modèles précédents par le fait que l'on peut y introduire un paramètre qui décrit l'orientation des fibres. Pour modéliser la conductivité thermique des échantillons à fibres perpendiculaires, le facteur d'orientation qui est mesuré selon l'axe perpendiculaire doit être recalculé selon l'axe parallèle au flux de chaleur. La conductivité théorique est alors donnée par l'élément  $K_{22}^*$  du tenseur. La figure 5-35 donne le rapport entre la conductivité thermique expérimentale et la conductivité calculée.

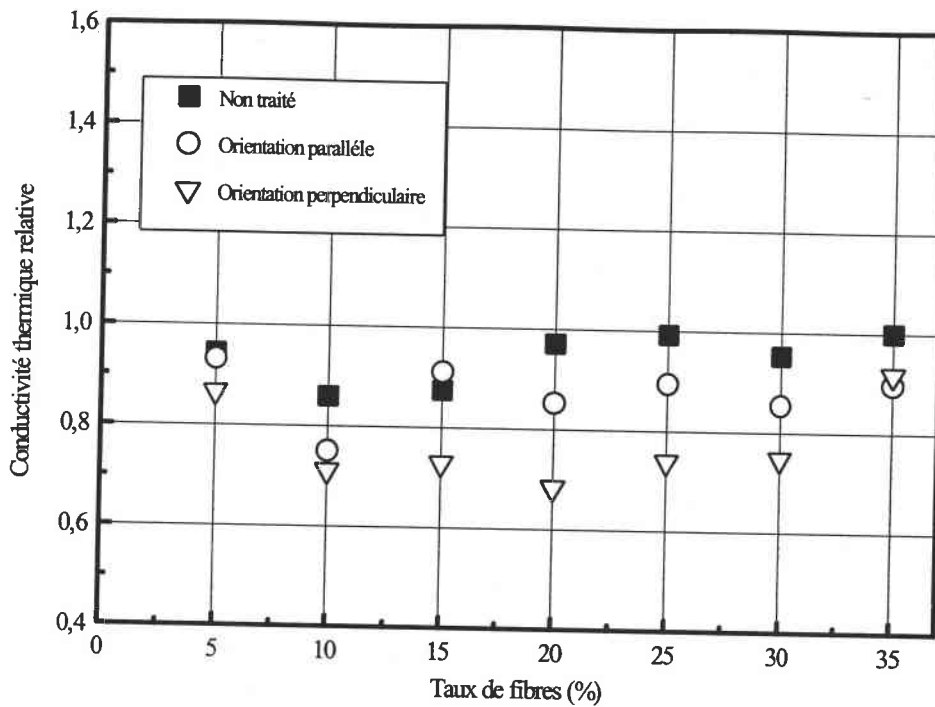


Figure 5-35: Comparaison du modèle de Chen et Wang [3] avec l'expérience pour les fibres T300mld (résine ARC 40/32).

Les séries (a) (non traitée) et (b) (orientation parallèle à la direction de mesure thermique) sont assez bien modélisées par le modèle de Chen et Wang [3] même si celui-ci surestime toujours la valeur de la conductivité thermique. Concernant la série orientée perpendiculairement (série c), la théorie surestime nettement la réalité.

Quelle que soit la série, le modèle de Chen et Wang [3] surestime toujours la conductivité thermique des échantillons utilisant les fibres T300 mld. Cela peut s'expliquer en partie par:

- la distribution en longueur des fibres (les fibres n'ont pas exactement une longueur de 200  $\mu\text{m}$ ). Ce modèle considère une longueur identique pour toutes les fibres dans le matériau. Or nous avons vu dans le chapitre 1 que lorsque la taille moyenne des fibres diminue cela implique un élargissement du pic de distribution particulièrement vers les faibles tailles.
- une mauvaise évaluation des effets à l'interface fibre - matrice;
- le fait que les porosités ne sont pas prises en compte.

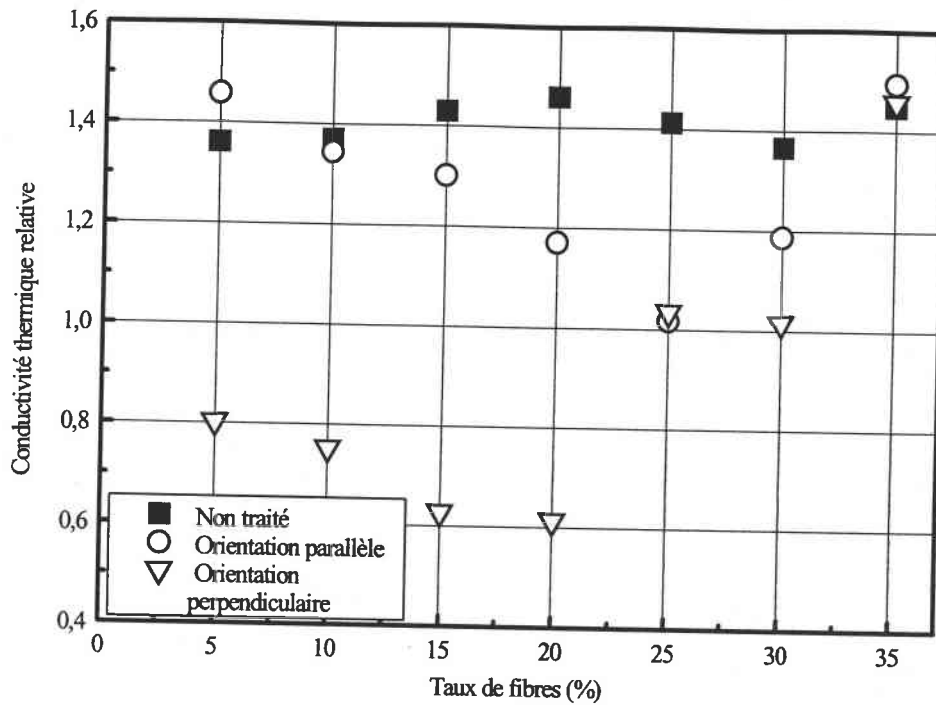


Figure 5-36: Comparaison du modèle de Chen et Wang [3] avec l'expérience pour les fibres P55 (résine ARC 40/32)

Pour les fibres P55, les écarts entre théorie et expérience sont plus importants et plus aléatoires (figure 5-36). Malgré un effort de calcul considérable, le modèle de Chen et Wang [3] ne permet pas de modéliser la conductivité thermique des composites à fibres courtes avec précision. Ce modèle semble être optimisé pour des matériaux utilisant des fibres de faible conductivité thermique ce qui expliquerait les écarts importants observés avec les fibres P55.

### c- Corrélation des orientations déduites de la conductivité thermique avec l'analyse d'images

L'étude de cette corrélation a pour but de vérifier l'hypothèse posée lors de la détermination de la fonction de distribution en orientation: l'orientation observée par analyse d'image en surface d'un échantillon orienté sous champs est - elle représentative de l'orientation dans l'ensemble du matériau ?

En utilisant la conductivité mesurée expérimentalement, on déduit une orientation en utilisant le modèle de Chen et Wang [3]. Le paramètre d'orientation de Kacir [20]  $\lambda$  est

transformé en facteur d'orientation. Les résultats sont représentés en fonction de la concentration en fibres et du type de fibre (tableau 5-4). Pour effectuer une comparaison, les facteurs d'orientation obtenus par analyse d'image sont présentés entre parenthèses.

Fibre	T300 mld		P55		
	aléatoires	perpendic.	aléatoires	perpendic.	parallèles
5	0.37 (0.656)	-0.185 (-0.247)	0.873 (0.127)	-0.93 (-0.768)	1.00 (0.969)
10	0.396 (0.605)	-0.127 (-0.176)	0.773 (0.215)	-0.815 (-0.705)	1.00 (0.992)
15	0.285 (0.531)	0.252 (-0.0092)	0.829 (0.263)	-0.909 (-0.637)	1.00 (0.989)
20	0.285 (0.523)	0.441 (0.294)	0.873 (0.312)	-0.909 (-0.399)	1.00 (0.988)

Tableau 5-4: Orientation déduite de la conductivité thermique (mesurée par analyse d'images) en fonction de la concentration en fibres T300 mld et P55.

Dans le cas des fibres T300 mld, la cohérence entre l'orientation mesurée et l'orientation déduite du modèle de Chen et Wang [3] est satisfaisante (on ne pouvait pas s'attendre à mieux pour des approches si différentes). Par contre, il est impossible d'exploiter ce modèle pour retrouver l'orientation des fibres P55.

Malgré le fait que ce modèle (comme d'autres) utilise des expressions générales, on observe qu'il n'est adapté qu'à un nombre restreint de matériaux similaires à ceux étudiés par les auteurs.

A notre connaissance, il s'agit de la première tentative pour étudier le lien entre deux méthodes telles que l'analyse d'images et la conductivité thermique. Au vu des résultats obtenus pour les fibres T300 mld, il est possible que l'orientation mesurée en deux dimension par analyse d'images soit similaire à celle mesurée par conductivité thermique en trois dimensions.

#### d- Comparaison des conductivités mesurées avec des valeurs tirées de la littérature



N'ayant pas trouvé de valeurs dans la littérature pour des composites à base de résine époxy, nous comparons nos résultats à ceux de Choy et al. [19], obtenus avec des composites à base de PPS chargé à 24 et 34 % en fibres de carbone T300<sup>(1)</sup>. Cette comparaison doit être possible car il n'y a pas de différence de conductivité thermique entre l'époxyde et le PPS.

Fraction volumique en fibres T300 (%)	24 Choy et al.	25 ce travail	34 Choy et al.	35 ce travail
$K_{11}$ en $W.m^{-1}.K^{-1}$ ( $F_p$ )	<b>1.52</b> (0.86)	<b>0.65</b> (0.534)	<b>1.72</b> (0.86)	<b>0.83</b> (0.39)
	<b>1.24</b> (0.578)	<b>0.62</b> (0.570)	<b>1.56</b> (0.578)	<b>0.80</b> (0.46)
				<b>0.79</b> (0.42)

Tableau 5-5: Comparaison des résultats présentés par Choy et al. [19] avec les mesures effectuées sur les composites fibres T300 mld - résine ARC 40/32

Choy et al. donnent une erreur de 4 % sur leurs mesures, les nôtres étant estimées entre 2 et 3 %. Nous sommes obligés de constater l'incompatibilité des résultats. Choy et al. [19], se basant sur une mesure diffusivité, ont utilisé des échantillons de 0.2 mm d'épaisseur. Cette épaisseur nous semble très faible en regard de la longueur moyenne des fibres.

(1) Choy et al. utilisent des fibres de carbone similaires aux T300 et dont la conductivité thermique est de  $9.4 W.m^{-1}.K^{-1}$ .

On peut exprimer quelques doutes si la mesure de température par rayonnement infra rouge est influencée par une faible transmission de la lumière incidente du fait de la faible épaisseur de l'échantillon.

Notre méthode de moulage risque d'introduire une incertitude concernant le facteur d'orientation. Dans le but d'évaluer les variations du facteur d'orientation, les échantillons de la série a (fibres T300 mld) ont été usinés successivement et les facteurs d'orientation déterminés pour chaque couche. Les valeurs sont données dans le tableau 5-6.

Fraction volumique en fibres T300 (%)	5	10	15	20	25	30
$F_p$	0.211	0.226	0.278	0.540	0.390	0.476
	0.281	0.227	0.378	0.566	0.440	0.460
	0.251	0.187	0.188	0.462	0.524	0.420
			0.138	0.434	0.449	0.370

Tableau 5-6: Facteur d'orientation mesuré à différentes profondeurs dans des échantillons aléatoires (fibres T300 mld, résine ARC 40/32)

L'erreur sur la mesure optique de l'orientation des fibres devient importante si l'on recherche une précision supérieure à 15 % lors d'une comparaison expérience théorie. En aucun cas les variations de l'orientation n'expliquent les différences avec les mesures de Choy et al. [19].

D'autres sources d'erreurs possibles sont:

- (i) la présence de plus en plus importante de fibres perpendiculaire à la surface (33% dans un matériau isotrope) fausse l'orientation car la mesure optique de leur orientation est quasi impossible avec notre montage. Pour le moment nous ne savons pas traiter ce problème;
- (ii) l'échantillon utilisé pour mesurer la conductivité thermique fait 7mm de long et la distance entre les thermocouples est de 3mm. Pour des fibres de la taille du mm, on peut se demander si le matériau peut toujours être considéré comme homogène. Nous n'avons pas approfondi ce sujet notre étude étant centrée autour de l'utilisation de fibres courtes.

### **5-5 Conclusion**

Dans ce travail, la précision de la mesure de la conductivité thermique en continu est améliorée et adaptée aux matériaux composites. Il a été montré que l'évolution de la conductivité thermique avec la concentration et la longueur des fibres est fortement dépendante de leur orientation. L'homogénéité de l'orientation sous champs dans les

domaines dilués et semi - dilués permet de fixer de façon relativement précise la fonction de distribution en orientation. Cette méthode est donc un outil d'étude très intéressant permettant par exemple de vérifier des simulations du comportement thermique des matériaux.

Aucun des modèles testés n'a pu décrire l'ensemble des données expérimentales. La bonne reproductibilité des mesures thermiques et la correspondance entre le comportement de la conductivité thermique, du module d'élasticité (chapitre 4) et du facteur d'orientation pour différentes concentrations en fibres nous amènent à constater l'insuffisance des modèles utilisés.

Concernant le dispositif expérimental utilisé, on constate une bonne précision dans les mesures effectuées. Toutefois la mesure de la conductivité d'un échantillon nécessite environ 4 heures voire plus si la température ambiante est élevée. Afin de remédier à cet inconvénient, l'utilisation d'éléments Peltier à la place des bains thermostatés est fort souhaitable. Il reste à noter que le prix de l'ensemble de l'équipement utilisé (environ 25 000 francs dont 20 000 francs pour le multimètre) est à peu près le dixième d'un instrument commercialisé (Thermoflixxer®, société SWO Polymertechnik Allemagne).

## 5-6 Bibliographie

- [1] Degiovanni A., "Conductivité et diffusivité thermique des solides", Techniques de l'ingénieur (1994)
- [2] Degiovanni A., Moyne C., Revue Générale de Thermique, 334, 557-564, 1989.
- [3] Chen C.H. et Wang Y.C., Mech. of Mat., 23, 217 - 228, 1996.
- [4] Multimètre Keithley 2001, Keithley Instruments Inc., Cleveland USA.
- [5] Mottram J.T., Material Design, 13-221, 1992.
- [6] Bigg D.M., "Thermal conductivity of heterophase polymer composition", éditions Godovski, 1994.

- [7] Kutcherov V., Chernoutsan A., J. Appl. Phys., 73(5) 2259, 1993.
- [8] Torquato S., J. Appl. Phys., 58, 3790, 1985.
- [9] Hashin Z. et Schtrikman S., J. Appl. Phys., 33, 1514, 1962.
- [10] Nielsen L.E., Ind. Engr. Chem. Fund., 13-17, 1974.
- [11] Kerner E.H., "Proc. Phys. Soc.", B69, 808 (1956).
- [12] Hamilton R.L., Crosser O.K., Ind. Engr. Chem. Fund. 1-187, 1962.
- [13] Agari Y., Uno T., J. Appl. Polym. Sci., 32-5705, 1986.
- [14] Halpin , Tsai
- [15] Eshelby J.D., Proc. Roy. Soc. London, A241, 376-396, 1957.
- [16] Withers P.J., Chorley E.M., Clyne T.W., "Mat. Sci. Eng.", A135, 173-178, 1991.
- [17] Hill R., J. Mech. Phys. Sol., Vol.13, 213, 1965.
- [18] Hatta H. et Taya M., J. Appl. Phys., 58(7), 2478 - 2486, 1985.
- [19] Choy C.L., Leung W.P., Kowk K.W., Polym. Comp., Vol 13 n°2, 1992.
- [20] Kacir L., Narkis M., Ishai O., Polym Eng. Sci. 15, 525, 1975.
- [21] Schmitt Y., Paulick C., Bour Y., Royer F.X., "Composition à base d'un polymère à comportement thixotrope et/ou pseudo-plastique chargée en microbilles", Brevet fr.n°9715824, 1997.

## **CONCLUSION**

Lorsque le développement des matériaux à base de fibres courtes de carbone insérées dans une résine époxyde a débuté dans notre équipe, les résines utilisées étaient des résines commerciales. Leur viscosité était élevée et leur résistance mécanique très moyenne. La forte viscosité du mélange fibre - résine ne permettait pas une action efficace des champs magnétiques.

Dans un premier temps, il nous a fallu appréhender les caractéristiques physiques et chimiques des constituants et leurs effets sur l'orientation. Différents essais ont été faits pour abaisser la viscosité du mélange (agitation mécanique, élévation de la température, ...). Les avancées importantes ont été obtenues avec l'utilisation de résines de très basse viscosité et à fort module développées en commun avec la société ARC.

Il est alors devenu possible d'orienter sous champs magnétiques des quantités importantes de fibres de 200 $\mu$ m de long (concentrations jusqu'à 20%) et d'obtenir des orientations supérieures à 80%. Les problèmes de fiabilité de la mesure de l'orientation des fibres ont été analysés et la méthode d'analyse optique couplée à un traitement informatique des images a été retenue.

Cette analyse reste toujours une analyse de surface du fait de l'opacité du matériau chargé en fibres de carbone. Nous avons vérifié que les mesures de surface étaient représentatives de l'échantillon massif dans toute la gamme de concentrations et validé notre protocole de mesure.

La méthode des champs magnétiques permet d'obtenir un matériau où l'orientation des fibres est homogène pour des concentrations allant jusqu'à 20%. Il en résulte qu'une bonne analyse optique de la surface de l'échantillon est représentative de celle de tout l'échantillon. L'étalonnage de l'orientation des fibres en fonction des champs appliqués (essentiellement en faisant varier le champ statique) a été réalisée pour des caractéristiques

différentes des résines et fibres. Le savoir faire acquis permet actuellement d'obtenir des échantillons présentant un facteur d'orientation bien précis.

L'homogénéité de l'orientation dans les matériaux traités a été confirmée par les résultats des essais mécaniques de traction effectués pour différentes compositions fibre - résine. Les hypothèses de plusieurs modèles de comportement théorique ont été confortées à l'ensemble des résultats expérimentaux.

Un dispositif de mesure de la conductivité thermique en régime continu a été développé de sorte que sa précision soit compatible avec l'étude de composites polymériques. Les fibres de carbone étant plus conductrices de la chaleur que la résine, une anisotropie de leur orientation implique des variations de la conductivité thermique du matériau.

Après un étalonnage du système, les variations de la conductivité thermique en fonction de l'orientation des fibres dans le matériau ont pu être mises en évidence et vérifiées avec d'autres fibres que les T300mld. Il a alors été possible d'évaluer la validité de la méthode en fonction de la concentration et de la longueur des fibres puis de comparer, avec quelques succès, les résultats expérimentaux obtenus à ceux d'un certain nombre de modèles théoriques ou semi - empiriques.

Un effort particulier devra porter sur la réduction du temps de mesure de la conductivité thermique (utilisation d'un mode de chauffage plus rapide que les bains).

A l'issue de ce travail, nous sommes en mesure d'élaborer des matériaux contenant jusqu'à 20% de fibres de carbone orientées dans une direction choisie, de vérifier la qualité de l'orientation par analyse d'image et de confirmer ce résultat par des mesures thermiques.

Les matériaux ainsi élaborés peuvent servir à vérifier des modélisations de comportement mécanique où thermique.

Il a été montré qu'une bonne orientation des fibres avec la direction de sollicitation mécanique apporte un gain en rigidité pouvant aller jusqu'à 40 %. On se rapproche ainsi des valeurs obtenues pour des fibres longues. Concernant les applications commerciales des matériaux,

des composites à taux plus élevé en fibres doivent être produits. Dans ce but, il est envisageable de combiner la technologie d'orientation des fibres par champs magnétiques et un dispositif d'extrusion pour obtenir une bonne orientation dans ces matériaux. Néanmoins l'apport de chaleur provenant de l'absorption de la haute fréquence et ses effets sur la polymérisation de la résine doivent être mieux maîtrisés. Un champ statique plus élevé (aimant supraconducteur) permettra de réduire la puissance du champ haute fréquence et de remédier à cet inconvénient.

Au vu des données liées à l'orientation des fibres, nous espérons que ce travail présentera un défi aux chercheurs travaillant dans la simulations des propriétés thermiques et mécaniques, très peu des modèles examinés reproduisant les données expérimentales.



# **ANNEXES**

## **ANNEXE 1: Les différents régimes de concentration en fonction du facteur de forme des fibres utilisées comme renforts.**

Le graphe ci dessous est obtenu à partir de l'équation de Lipscomb [1] qui est un développement de celle proposée par Hand [2].

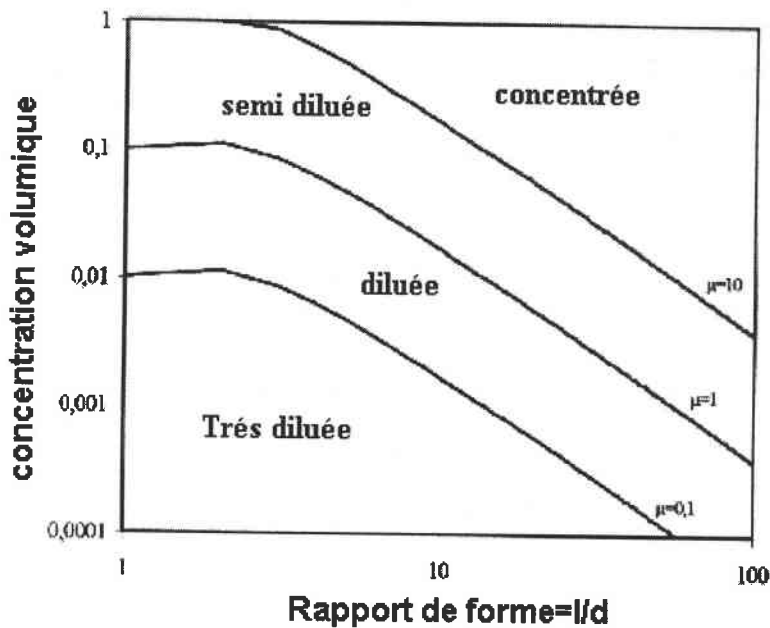


Figure A1: Les régimes de concentration en fonction du type de charge  $\mu$  le coefficient de couplage entre la résine et les fibres.

Cette figure montre l'importance du facteur de forme des fibres. Dans l'ensemble de ce travail, l'importance de la viscosité du mélange fibres - matrice est apparue. Celle ci ne va pas seulement dépendre de la concentration mais aussi du facteur de forme des fibres.

Dans les conditions expérimentales actuelles, pour obtenir une bonne orientation, sous champs magnétiques, il est impératif que le mélange se situe en deçà des régimes concentrés voire même semi dilué.

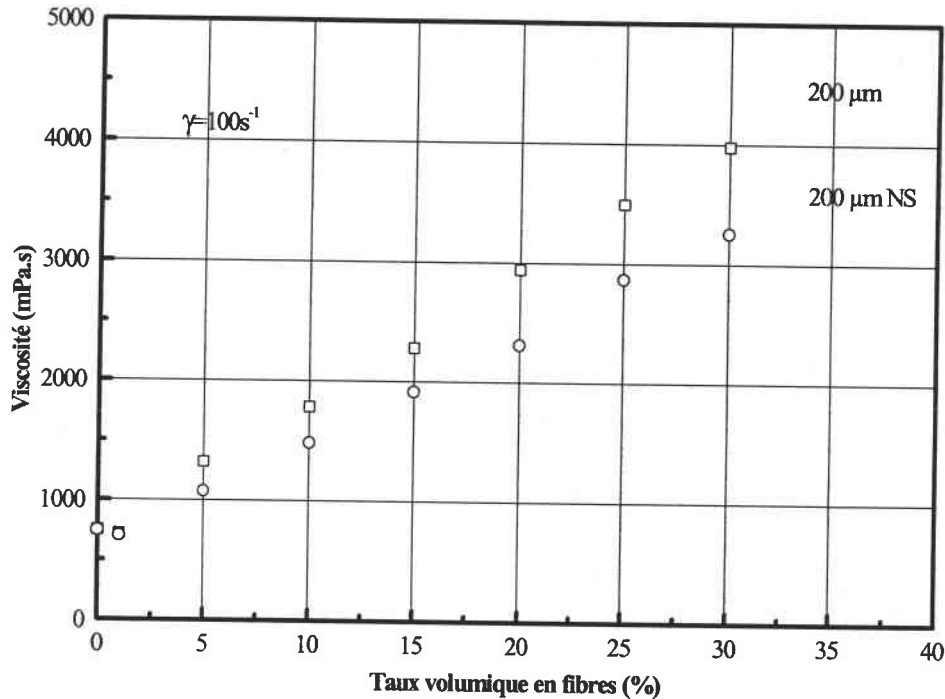
### Bibliographie

- [1] Lipscomb G.G., Denn M.M., Hur D.V., Boger D.V., J. Non Newtonian Fluid Mech., Vol. 26, 297, 1988.

[2] Hand G.L., J. Fluid. Mech., Vol. 13, 33, 1962.

## **ANNEXE 2: Effet de l'ensimage sur la viscosité pour différentes concentrations en fibres.**

L'étude de la viscosité en fonction de la concentration volumique en fibres à un gradient de  $100 \text{ s}^{-1}$  est effectuée pour des fibres ensimées et des fibres non ensimées du type T300 mld.



**Influence de l'ensimage sur le comportement rhéologique du composite ARC-24/32 en fonction du taux volumique en fibres**

Les mélanges étudiés sont composés de fibres T300 mld (ensimées ou non) dans de la résine ARC 40/32.

La viscosité des mélanges à base de fibres non ensimées est toujours inférieure à celle des mélanges composés de fibres ensimées. Ainsi pour une concentration de 20% de fibres non ensimées, la viscosité est de 2314 mPa.s. Pour les fibres ensimées, elle est de 2940 mPa.s.

Cette propriété est due aux caractéristiques physico-chimiques de l'ensimage. Ce dernier est constitué d'un polymère de type époxyde. Il est adapté aux résines portant elles aussi une fonction époxyde de façon à permettre une bonne adhésion entre fibres et matrice. Il en découle une viscosité plus importante du mélange.

### **ANNEXE 3: Analyse d'image par traitement des discontinuités locales**

Dans le cas des fibres, les discontinuités locales sont les contours des fibres. Ce sont des transitions dans l'intensité lumineuse de l'image. On passe d'une matrice claire à une fibre sombre.

Afin de procéder à l'analyse des contours, différentes techniques sont utilisables. Elles ont en commun de détecter les contours selon la démarche suivante:

- agrandissement des contours en utilisant la différentiation;
- seuillage des résultats de sorte que seuls les points dont la dérivée est suffisamment grande soient retenus comme contours.

#### A-3-1 La technique du gradient

Dans le cas continu à deux dimensions, le gradient de l'intensité lumineuse d'une image  $I(x,y)$  est défini dans deux directions orthogonales par

$$G_x(x,y) = \frac{\partial I(x,y)}{\partial x} \text{ et } G_y(x,y) = \frac{\partial I(x,y)}{\partial y}. \quad (\text{A-3-1})$$

Dans le cas discret, ces gradients sont approximatés [1] et les opérateurs obtenus sont mis en œuvre par convolution avec les matrices suivantes:

$$0^\circ \Rightarrow \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix}; 90^\circ \Rightarrow \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{vmatrix}; 45^\circ \Rightarrow \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix}; 135^\circ \Rightarrow \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{vmatrix} \quad (\text{A-3-2})$$

Ces matrices vont augmenter le contraste dans les directions  $\{0; 90\}$  et  $\{45; 135\}$ .

Comme le montre la figure (A-3-1), le désavantage des filtres du type gradient est leur sensibilité au bruit de fond.

Quand ils sont appliqués à des grains ou à une image texturée, l'image de sortie comprend de fortes intensités qui correspondent à la fois à de vrais contours (transition de luminance) et à du bruit (texture, aspect du grain...). Cette sensibilité au bruit peut être parfois réduite en utilisant de plus grandes matrices pour approximer les gradients.

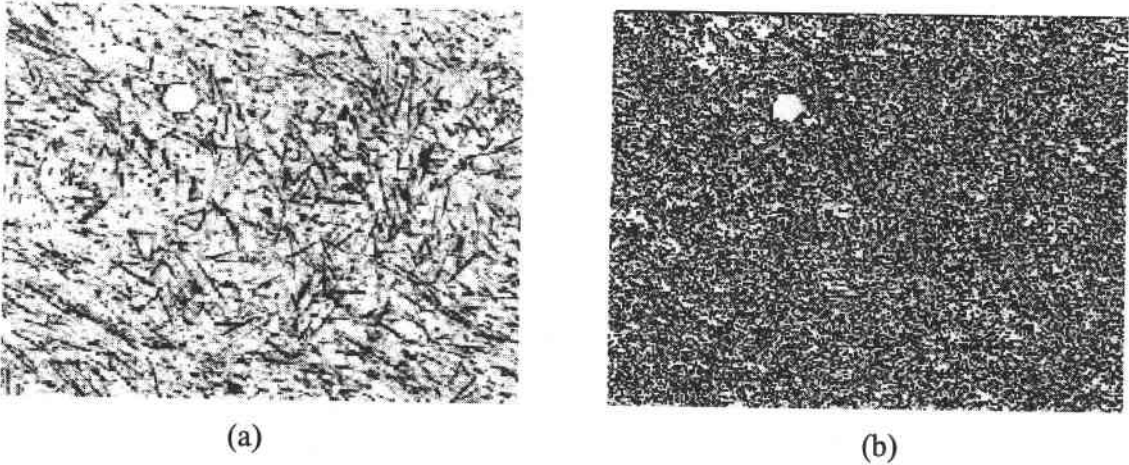


Figure A-3-1: (a) Image originale (2-C-3); (b) Application de la technique du gradient.

Après avoir utilisé les gradients, une image en niveaux de gris des contours est obtenue. L'étape suivante consisterait à identifier les pixels de ces images correspondant aux points de contour. Malheureusement, la technique du gradient est trop sensible au bruit de fond pour permettre une analyse efficace du matériau composite considéré.

### A-3-2 La technique de Laplace

Dans le cas d'une fonction à deux dimensions, le Laplacien s'écrit:

$$\nabla^2(x,y) = \frac{\partial^2 I(x,y)}{\partial^2 x} + \frac{\partial^2 I(x,y)}{\partial^2 y} \quad (\text{A-3-3})$$

Le Laplacien peut être approximé dans le cas discret par convolution avec des matrices (A-3-4) dans le cas de quatre voisins (a) ou de huit voisins (b).

$$(a) \begin{vmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & -4 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{vmatrix} \quad (b) \begin{vmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & -8 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \end{vmatrix} \quad (A-3-4)$$

L'amplitude du Laplacien est utilisée pour mesurer la « force » des contours, et définir une stratégie de seuillage pour marquer les points du contour.

Cette méthode a de grands inconvénients:

- une dérivée du second ordre est plus sensible au bruit qu'une dérivée du premier ordre ce qui rend la distinction entre contour et bruit plus difficile avec le Laplacien.
- le Laplacien ne transporte pas d'information directionnelle.

Une meilleure approche consiste à considérer les contours comme les points où le Laplacien s'annule. Une détection simple est obtenue en seuillant le Laplacien pour ne retenir que les intensités positives et détecter ainsi les limites de l'image. Le schéma suivi est donc:

**Laplacien  $\Rightarrow$  Seuillage  $> 0 \Rightarrow$  Détection des limites: points de contour**

Par rapport au seuillage à l'aide du gradient, la détection des points où le Laplacien s'annule a l'avantage d'assimiler les fibres à des courbes fermées d'une épaisseur d'un pixel:

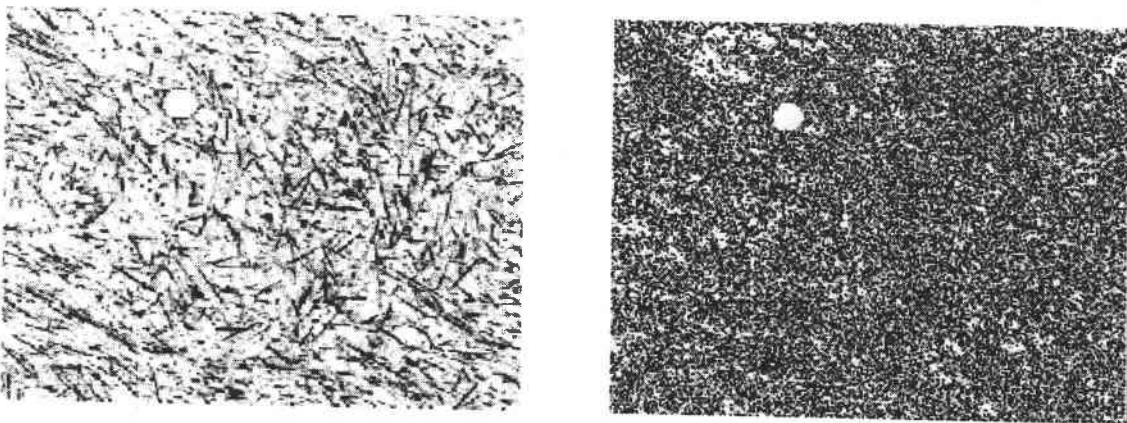


Figure A-3-2: (a) Image originale (Fig.2-C-3); (b) Application du Laplacien.

Ce procédé est intéressant lorsque la détection des limites d'un objet précis est recherchée. Cependant, l'utilisation d'une matrice  $[3 \times 3]$  est une approximation du Laplacien et produit un

grand nombre de points ou celui ci s'annule, nombre d'entre eux correspondant au bruit. La technique du Laplacien ne sera que rarement utilisée pour l'analyse du matériau composite fibres de carbone - résine époxyde.

### A-3-3 Technique de l'ajustement du patron (Template matching)

Pour cette méthode de détection des contours, l'image est comparée à un jeu de masques de contour ou patrons. Le patron qui est le mieux assorti au voisinage local de l'image, donne les informations sur le profil du contour.

Un algorithme simple utilise une matrice [3\*3] comme patron du contour. A titre d'exemple on peut donner deux patrons qui mettent en évidence les contours verticaux et diagonaux. Il s'agit des masques de contour de Sobel [2].

$$\begin{vmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 \\ -1 & -1 & -1 \end{vmatrix} \quad \begin{vmatrix} 0 & 1 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \\ -1 & -1 & 0 \end{vmatrix} \quad (A-3-5)$$

Un ensemble de huit filtres semblables ( $k=1$  à 8) est construit à partir d'un masque initial en faisant des rotations de  $45^\circ$  de ce dernier. Ces masques sont appliqués en parallèle à l'image  $(I(x,y))$  selon le schéma suivant.

	<b>filtre <math>0^\circ</math></b>		$\Rightarrow G_k = \text{Max }  G_i $  $\Rightarrow \theta = k_{\text{max}}$
	...	<b>Détection</b>	
<b><math>I(x,y) \Rightarrow</math></b>	<b>filtre <math>45^\circ \Rightarrow</math></b>	<b>du</b>	
	...	<b>maximum</b>	
	<b>filtre <math>335^\circ</math></b>	<b>d'intensité</b>	

Le filtre qui va donner l'intensité  $G$  la plus élevée indiquera l'orientation et l'amplitude du contour. La détection du contour est achevée après une étape de seuillage (figure A-3-3).



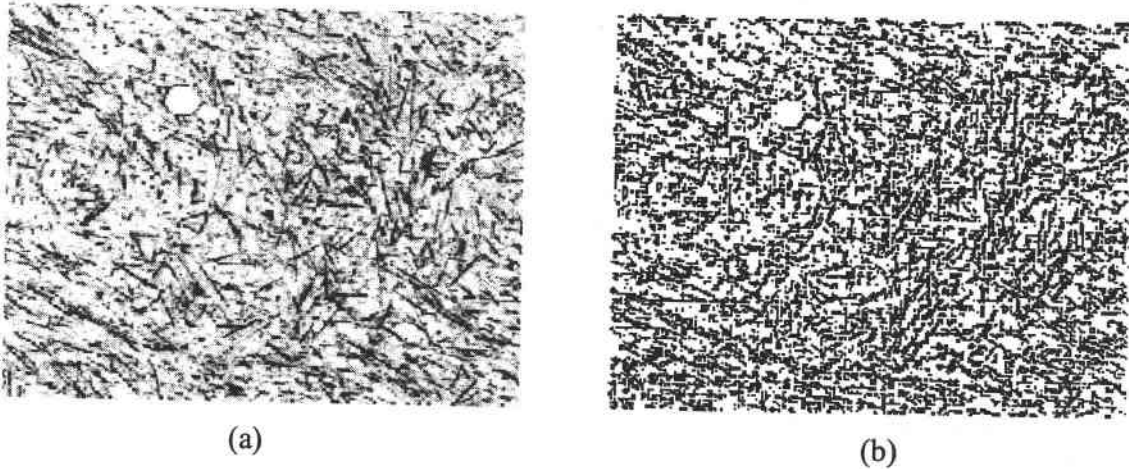


Figure A-3-3: (a) Image originale (2-C-3); (b) Utilisation de la technique du patron assorti puis seuillage de l'image.

L'utilisation d'une taille de masque plus grande (matrice  $[5*5]$  ou  $[7*7]$ ) augmente la précision et diminue la sensibilité au bruit. Cette technique est la plus utilisée pour filtrer les images et isoler les fibres du bruit de fond. Elle nécessite cependant d'autres étapes relativement longues afin de solidariser les pixels du contour de chaque fibre et rendre ainsi le seuillage, et donc le calcul de l'orientation, possible.

#### A-3-4 La technique de détection "robuste" des contours [2]

Les techniques de détection des contours décrites jusqu'à présent sont basées sur les dérivées du premier et du second ordre que l'on estime en convoluant les images avec des masques de petite taille. Ces méthodes sont dites non robustes car elles sont très sensibles au bruit et tendent à donner des estimations peu fiables des dérivées.

De façon schématique, les différences du premier et du second ordre telles que  $X_{n-1} - X_n$  ou  $X_{n+1} - 2 * X_n + X_{n-1}$  amplifient les variations significatives de l'image. La principale difficulté est de distinguer les variations locales correspondant aux contours de celles provenant du bruit.

Les filtres robustes sont basés sur l'hypothèse que les variations locales correspondant aux transitions des contours sont plus lentes que celles correspondant au bruit. L'idée est de lisser

le signal avant d'estimer ses dérivées. Une façon simple de mettre en œuvre un tel opérateur, afin d'estimer la dérivée première, consiste à utiliser l'opérateur:

$$y_n = \frac{x_1 + \dots + x_n}{n} - \frac{x_{-1} + \dots + x_{-n}}{n}. \quad (\text{A-3-6})$$

Un lissage sur un grand voisinage efface le bruit mais tend à délocaliser la détection des contours du fait que le gradient a de grandes valeurs sur un grand voisinage (figure A-3-4).

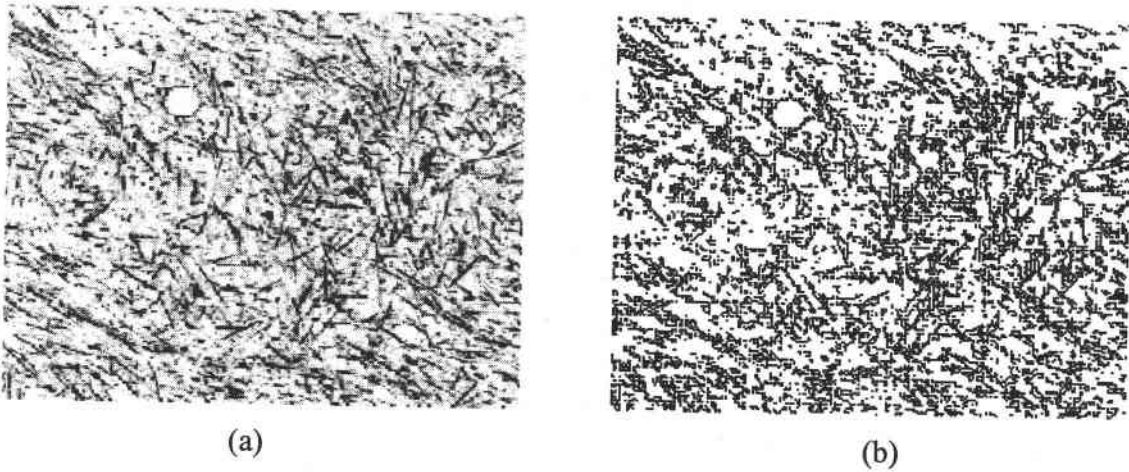


Figure A-3-4: (a) Image originale (2-C-3); (b) Détection "robuste" du contour des fibres.

Il faut faire un choix entre une bonne détection des contours locaux avec du bruit et une absence de bruit avec des contours faiblement localisés.

Un autre problème concernera la mise en œuvre du filtre: des convolutions de grande taille sont rencontrées ce qui implique des opérateurs gourmands en temps.

Cette technique "robuste" de détection ne sera utilisée que pour de faibles concentrations en fibres. Pour des concentrations plus élevées (>20%) la délocalisation des contours déforme le matériau et donc perturbe l'orientation réelle des fibres.

D'autres techniques de détection des contours ont été appliquées, elles utilisent des filtres tels que ceux de Canny [3], Deriche [4] ou de Shen - Castan [5]. Ces techniques impliquent l'optimisation des filtres (critère de Canny - Deriche [2]) pour détecter les contours à partir du gradient d'une image plutôt qu'à partir du Laplacien.

### A-3-5 Enchaînements et Approximation polygonale

Comme il est expliqué précédemment, de nombreuses techniques de détection des contours représentent ces derniers comme un suite de pixels isolés, ce qui rend le seuillage et la détermination de l'orientation des fibres impossibles.

L'enchaînement des contours consiste à représenter les pixels comme une suite de pixels consécutifs.

Les avantages sont:

- (i) une grande réduction du nombre de données;
- (ii) une représentation plus correcte de certains algorithmes;
- (iii) comme beaucoup de formes sont caractérisées par leurs limites, il est plus correct d'utiliser une fonction limite pour la reconnaissance d'un motif.

Une chaîne est formée de pixels adjacents à un contour et se trouvant entre deux extrémités libres (deux triples points ou un point triple et une extrémité). Les chaînes sont orientées et leur orientation peut être fonction du gradient. Chaque chaîne possède un pixel de tête, contenant des informations telles que la taille de la chaîne, le nombre de chaînes précédentes...

Les chaînes sont approximées comme des polygones composés de segments linéaires. Les données seront ainsi beaucoup moins dépendantes de la digitalisation. Il en résulte une réduction de données. Il sera alors possible d'effectuer des calculs qui auraient autrement été très longs.

En résumé, la détection du contour des fibres peut se faire selon deux méthodes: une méthode classique de filtrage basée sur des opérations morphologiques et une seconde méthode basée sur les variations des discontinuités locales. Dans la pratique, les deux méthodes sont imbriquées. Des opérations de filtrage morphologique interviennent sur l'image binaire avant l'utilisation de la technique du gradient ou du Laplacien. De même, un filtrage morphologique sera souvent utilisé après l'enchaînement (figure A-3-5).

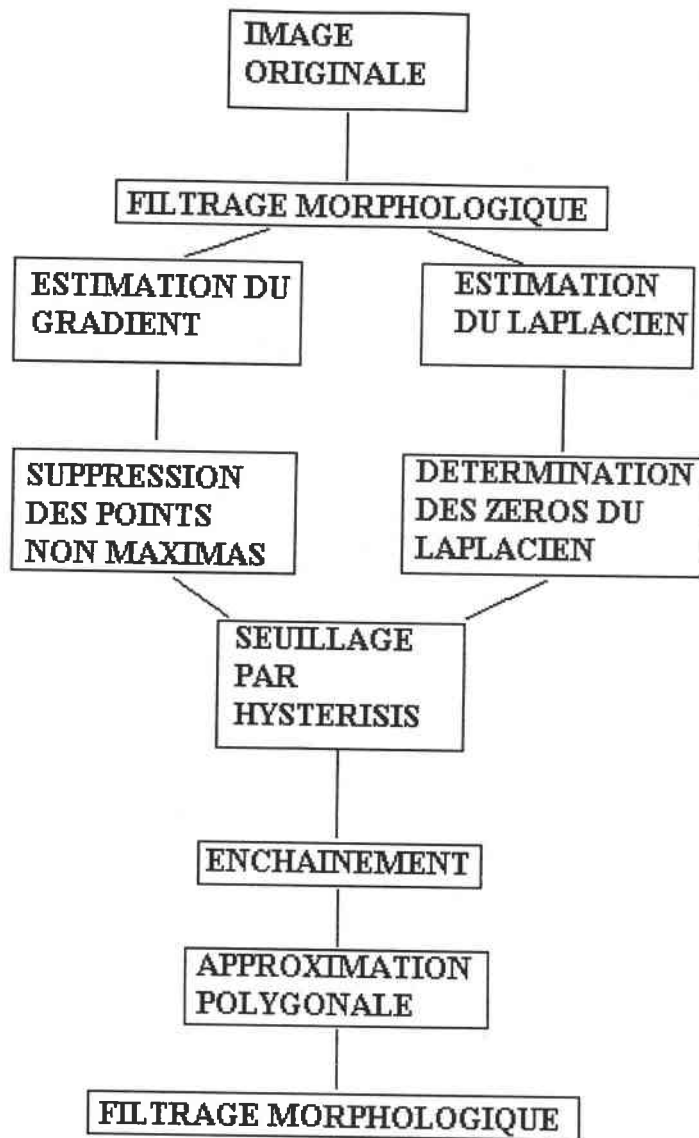


figure A-3-5: Détection des contours par la mesure des discontinuités locales.

#### A-3-6 Bibliographie

- [1] Ayache N., "A new approach for recognition and positioning of two dimensional objects", IEEE, PAMI, Vol. 8, 44, 54, 1986.
- [2] Noesis, "A tutorial on image processing", Noesis, 1991.
- [3] Canny J., "A computational approach for edge detection", IEEE, PAMI, Vol. 8, 679, 698, 1986.
- [4] Deriche R., International Journal of computer Vision, Vol. 1, 167, 187, 1987.
- [5] Shen K., Castan S., "An optimal linear operator for edge detection", Conference on vision and pattern recognition, IEEE, Juin 1986.

#### ANNEXE 4: Fluctuations de température lors de la mesure de la conductivité thermique d'un composite.

Dans la figure ci dessous, les fluctuations de la source froide ne sont pas représentées. La température moyenne qui y est observée est de  $0,03^{\circ}\text{C} \pm 0,005^{\circ}\text{C}$  sur une période de 150 minutes. Pour une plus grande stabilité des mesures, les soudures froides des différents appareils de mesure (fluxmètres, thermocouples) sont placées dans une gaine en plastique entourée de ruban adhésif puis plongées dans un tube en cuivre rempli de paraffine. Tout cela dans le but de les protéger de l'eau à  $0^{\circ}\text{C}$  dans laquelle le tube en cuivre est plongé.

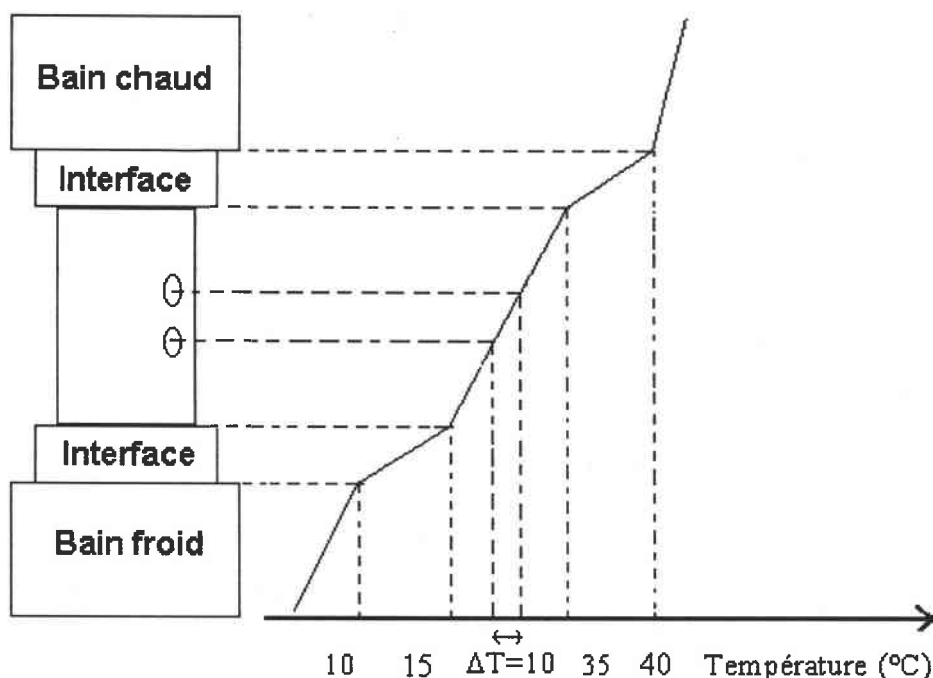


Figure 5-3-a: Fluctuations de température dans l'appareil pour un échantillon en composite carbone-époxyde.

Sur un intervalle de 10 minutes on observe une variation de  $0,07^{\circ}\text{C}$  dans le bain froid et de  $0,03^{\circ}\text{C}$  dans le bain chaud. Les fluctuations dans la couche protectrice en époxyde sont difficiles à déterminer du fait de la faible conductivité de la résine. Les thermocouples étant à une profondeur inconnue dans l'époxy, c'est la chute de température due à l'époxyde qui est mesurée. Pour un écart de  $20,8^{\circ}\text{C}$  entre les bains, un  $\Delta T$  de  $0,7^{\circ}\text{C}$  est mesuré dans

l'échantillon. Chaque couche de résine induit donc une chute de  $10^{\circ}\text{C}$  ce qui a pour effet de réduire les fluctuations de température à l'intérieur de l'échantillon.

Suite à différents essais, il s'est avéré que le flux n'est pas constant et homogène dans tout le volume de l'échantillon. Une perte d'environ 10% est due au rayonnement et à la convection. De plus, le flux n'est pas totalement colinéaire au gradient de température d'où la nécessité d'une bonne isolation thermique avec de la laine minérale.

En utilisant un échantillon en aluminium percé en différents endroits, la linéarité du gradient thermique a pu être étudiée. La droite ainsi obtenue a un écart à l'origine très faible de  $0,01^{\circ}\text{C}$ .

Remarque:

Une étude de cette méthode de mesure avec des thermocouples de type N en montage double différentiel effectuée dans un autre travail [1] montre une amélioration de la précision des résultats mais des problèmes d'isolation des thermocouples posent problème.

Bibliographie

- [1] Leuvre C., "Contribution à l'amélioration d'un appareil mesurant la conductivité thermique", stage 1997.