



Thèse de Doctorat

Mémoire présenté en vue de l'obtention du grade de Docteur de l'Université de Nantes sous le sceau de l'Université Bretagne Loire

Fiacre Djonkone SENGHOR

École doctorale : Sciences et technologies de l'information, et mathématiques

Discipline : Génie Électrique - Électronique, section CNU 63 Unité de recherche : Institut de Recherche en Énergie Électrique de Nantes Atlantique (IREENA)

Soutenue le 20 Mars 2017

Identification des propriétés anisotropes des matériaux complexes : application aux matériaux composites stratifiés

JURY

Présidente :	M ^{me} Afef LEBOUC, Directrice de Recherche CNRS, G2ELAB, INP Grenoble						
Rapporteurs :	M. Lionel PICHON, Directeur de Recherche CNRS, GeePS, SUPELEC						
	M. Yvonnick LE MENACH, Professeur des Universités, L2EP, Université Lille 1						
Invité :	M. Marc AUDENAERT, Responsable partenariats R&D, ARKEMA						
Directeurs de thèse :	M. Didier TRICHET, Professeur des Universités, École Polytechnique de l'Université de Nantes						
	M. Gérard BERTHIAU, Professeur des Universités, IUT de Saint-Nazaire						
Encadrant :	M. Guillaume WASSELYNCK, Maître de conférence, IUT de Saint-Nazaire						

Table des matières

IN	TROI	DUCTION GÉNÉRALE	13
	Con	texte industrielle	13
	Prob	blématique	14
	Stru	cturation du projet	15
	Obje	ectifs de la thèse	16
	Orga	anisation du manuscrit	17
1	ÉTA	Γ DE L'ART	19
	1.1	Introduction	21
	1.2	Matériaux composites	21
		1.2.1 Définition	21
		1.2.2 Caractéristiques générales	21
		1.2.3 Constituants des matériaux composites	22
		1.2.4 Architecture des pièces composites	26
	1.3	Généralités sur les propriétés physiques	29
		1.3.1 Cas des matériaux composites stratifiés	29
		1.3.2 Moyens d'améliorations des propriétés physiques	30
		1.3.3 Intérêt de la modélisation et d'un banc expérimental	34
	1.4	Outils de modélisation physique des matériaux	35
		1.4.1 Formalisme d'homogénéisation	36
		1.4.2 Modèles de prédictions des propriétés physiques	37
		1.4.3 Conclusion et démarche de modélisation retenue	48
	1.5	Caractérisation expérimentale des matériaux	49
		1.5.1 Méthodes sans contact	50
		1.5.2 Méthodes avec contact	51
		1.5.3 Bilan sur la caractérisation expérimentale	57
	1.6	Conclusion	57
2	MOI	DÉLISATION ÉLECTRIQUE DES MATÉRIAUX COMPOSITES STRATIFIÉS À	
	REN	IFORT UNIDIRECTIONNEL	59
	2.1	Introduction	61
	2.2	Méthode d'homogénéisation avec prise en compte de la percolation	61
		2.2.1 Décomposition géométrique d'un stratifié UD	62
		2.2.2 Transition d'échelles micro-meso	63
	2.3	Application aux composites UD à fibres parallèles	69
		2.3.1 Génération de la géométrie d'une cellule représentative	69
		2.3.2 Résolution numérique et résultats	72

	2.4	Application aux composites UD à fibres ondulées	75
		2.4.1 Génération de la géométrie du VER	75
		2.4.2 Méthode de résolution numérique	76
		2.4.3 Résultats de modélisation et discussions	82
		2.4.4 Validation expérimentale	87
	2.5	Conclusion	88
3	DÉV	ELOPPEMENT D'UN BANC D'ESSAI DE CARACTÉRISATION ÉLECTRIQUE	89
-	3.1	Introduction	91
	3.2	Dispositif du banc d'essai expérimental	91
		3.2.1 Objectifs	91
		3.2.2 Description générale du banc d'essai	93
	3.3	Présentation des éprouvettes de matériaux composites	94
		3.3.1 Films de résines polymères chargés	94
		3.3.2 Plaques de composites stratifiés à plis tissés	95
		3.3.3 Couches minces conductrices	97
	3.4	Protocole de mesure électrique	97
		3.4.1 Caractérisation électrique des films et plaques composites	98
		3.4.2 Caractérisation électrique des couches minces conductrices	101
	3.5	Analyse de la méthode de mesure	105
		3.5.1 Limites du banc d'essai	105
		3.5.2 Illustration expérimentale de la validé du protocole de mesure	110
	3.6	Conclusion	111
4	APP	LICATIONS AUX COMPOSITES STRATIFIÉS À RENFORT TISSÉS	113
	4.1	Introduction	115
	4.2	Modélisation d'un matériau composite tissé	115
	4.3	Morphologie du matériau composite tissé Satin 5H	118
	4.4	Première transition d'échelle	120
	4.5	Seconde transition d'échelle	121
		4.5.1 Représentation de la géométrie du pli tissé	121
		4.5.2 Résolution du problème	123
		4.5.3 Résultats de la seconde transition et sensibilité	125
	4.6	Troisième transition d'échelle	128
	4.7	Caractérisation électrique du composite stratifié	129
		4.7.1 Mesure du tenseur de conductivité électrique	129
		4.7.2 Résultats expérimentaux du tenseur de conductivité	132
	4.8	Validation du modèle et discussion	133
	4.9	Conclusion	134
CC	ONCL	USION ET PERSPECTIVES	135
BI	BLIO	GRAPHIE	137
A	ANN	JEXES	153
	A 1	Calcul des résistances électriques équivalentes des cellules unitaires	153
		A.1.1 Résistances des éléments constitutives des cellules unitaires	153
	A.2	Caractéristiques physiques et géométriques des fibres	162

Table des figures

1	Évolution de l'usage des composites dans les avions : tendance et exemple [1]	13
2	Structuration du projet	16
1.1	Constituants d'un matériau composite [2]	22
1.2	Les différentes types de renforts	23
1.3	Les principaux types d'armatures 2D de renforts de fibres continues	24
1.4	Tissages multidirectionnels volumiques 3D [15].	26
1.5	Matériau composite en structure sandwich	27
1.6	Matériau composite stratifié à plis UD	28
1.7	Courbes de percolation électrique de polymères chargés : (a) en PANI/Polyamid	le-
	11 et (b) en Carbone/Polyéthylène téréphtalate [25]	31
1.8	Seuil de percolation en fonction du rapport d'aspect pour des nanocompo-	
	sites (mélange NTCs/époxy) de formes différentes [30]	32
1.9	Images MEB de la morphologie des fibres de carbone : (a) avant greffage de	
	NTCs; (b) après greffage à la surface de fibres de carbone [43]	33
1.10	Aligment des NTCs aux interfaces entre les plis d'un composite startifié [46].	33
1.11	Illustration du formalisme de l'homogénéisation [50]	36
1.12	Courbe de percolation électrique : conductivité électrique en fonction de la	
	fraction volumique ϕ	43
1.13	Différentes échelles d'homogénéisation d'un composite à microstructure com-	
	plexe [94]	48
1.14	Schéma de principe du CND par courants de Foucault [97]	50
1.15	Méthode des deux points : (a) schéma de mesure et (b) les différentes ré-	
	sistances du circuit de mesure	52
1.16	Méthode des quatre points : (a) schéma de mesure et (b) les différentes	
	résistances du circuit de mesure	53
1.17	Principe de mesure de la conductivité par la méthode alternative	54
1.18	Principe de réduction de la tension thermoélectrique par la méthode in-	
1 10	verse : a)Polarite positive et b) Polarite negative	55
1.19	Spectroscopie diélectrique dynamique : Principe de mesure	56
2.1	Décomposition des composites à renforts UD en différentes échelles d'étude.	62
2.2	Coupe transverse micrographique d'un matériau composite à renforts UD :	
	mise en évidence de la variabilité de la microstructure.	64
2.3	Décomposition géométrique d'un pli UD de matériau composite en n cellules	
	de VER	64
2.4	Composante fluctuante du champ	65

2.5	Analyse de la transformer de Fourier spatiale sur une cellule élémentaire (VER)	65
2.6	Champ homogénéisé avec intervalle de confiance	66
2.7	Illustration de l'influence du nombre de tirage sur l'intervalle de confiance à 90% de la loi de distribution de Student	66
2.8	Illustration de l'influence de la taille des VER sur la représentativité de l'en- semble du matériau	67
2.9	Algorithme de résolution itératif sur l'estimation des propriétés physiques effectives	68
2.10	Profil de force de répulsion en fonction de distance r entre deux centres de fibres	70
2.11	Quelques étapes de la génération d'une cellule représentative du composite	70
2.12	Modélisation numérique du paramètre de chevauchement dans la micro- structure 2D d'une cellule de VER	71
2.13	Schéma de la microstructure 2D représentative d'une coupe transverse d'un composite à renforts UD générée sur MATLAB [®] avec les conditions limites	
2.14	(en blanc : fibres et en noir : la matrice polymère)	72
	volumique de fibre	73
2.15	Effet de la taille du VER sur la probabilité de percolation	74
2.16	Mesure de la période d'ondulation des fibres d'un composite UD [118]	74
2.17	Découpage d'un VER de matériau composite à renforts UD en couches : (a) VER d'un composite UD à fibres ondulées et (b) coupe transverse (couche) .	75
2.18	Reconstruction du VER de composite à renforts UD à partir de l'empilement des couches	76
2.19	(a) Illustration du modèle électrique 3D multi-couches sur la fibre k, (b) réseau de résistance 3D autour des nœuds de la fibre k	78
2.20	Contact entre deux fibres de révolution (contact de Hertz))	79
2.21	Évolution de la conductivité moyenne en fonction de la fraction volumique de fibres	82
2.22 2.23	Limites de confiance de la conductivité électrique transverse	84
	conductivités électriques longitudinale et transverse pour différents % volu- miques de fibres.	85
2.24	Étude comparative entre les modèles analytiques et notre modèle de perco- lation sur l'estimation de la conductivité électrique transverse.	86
2.25	Conductivité électrique transverse calculée.	87
3.1	Configuration de mesure des résistivités (ou résistances) électriques	92
3.2	Fabrication des plaques composites stratifiées : (a) empilement de plis pré- imprégnés et (b) moule RTM 400x400mm.	95
3.3	Schéma du dispositif de consolidation utilisé par thermo-compression des plagues composites	96
3.4	Cycle de températures de consolidation par presse chauffante appliqué pour la fabrication des plaques composites stratifiées par « film stacking »	96
3.5	Méthode de mesure de résistance électrique à courant constant avec un point de mesure toutes les trois socondos	90 07
	point de mésure toutes les trois secondes.	7/

3.6	Méthode des deux points : (a) schéma de mesure et (b) les différentes ré- sistances du circuit de mesure	08
37	Méthode des quatre points : (a) schéma de mesure et (b) les différentes	90
5.7	résistances du circuit de mesure	99
3.8	Structure du banc d'essai de caractérisation électrique des composites.	99
3.9	D'après [135] Variation de la résistance de contact en fonction de l'effort	
	normal sur le contact.	100
3.10	Principe de la détermination de la conductivité électrique de couche mince	
	sur substrat non conducteur par la méthode des quatre points	102
3.11	Banc de test pour la caractérisation électrique des éprouvettes couches minces	:
	(a) maillage de la surface des couches minces et (b) tête de mesure 4 pointes	.103
3.12	Estimation de l'épaisseur <i>e</i> d'un dépôt de couche mince conductrice sur un	
	substrat composite au profilomètre optique.	104
3.13	Estimation de l'épaisseur <i>e</i> d'un dépôt de couche mince conductrice sur un	
	substrat composite au microscopie électronique à balayage (MEB)	104
3.14	Caractérisation de l'exactitude du banc d'essai sur la mesure de la résistance	
	électrique.	110
3.15	Conductivité électrique transverse mesurée	110
41	Démarche d'homogénéisation multi-échelle de prédiction des propriétés élec-	
7.1	triques d'un composite	116
42	Représentation (a) 2D et (b) 3D du motif périodique ou Volume Équivalent	110
1.2	Représentation (d) 2D et (D) 3D du motif periodique ou volume Equivalent Représentatif (VER) de composites tissés à armures taffetas et satin	117
4.3	Motif périodique ou Volume Équivalent Représentatif (VER $_{P}$) de composites	,
110	tissés Satin 5H.	118
4.4	Limites de confiance de la conductivité électrique transverse du toron.	121
4.5	Décomposition du motif périodique répétitif en cinq cellules unitaires	122
4.6	Les quatre types de cellules génériques de la décomposition des cellules	
	unitaires	122
4.7	Réseau de résistances électriques équivalentes dans la direction (ox) du mo-	
	tif répétitif représentatif d'un pli tissé Satin 5H	123
4.8	Réseau de résistances électriques équivalentes dans la direction (oz) du mo-	
	tif répétitif représentatif d'un pli tissé Satin 5H	123
4.9	Schéma de reconstruction des cellules unitaires à partir des différents types	
	d'éléments constitutifs	124
4.10	Circuits électriques équivalents des différentes cellules unitaires en x	125
4.11	Circuits électriques équivalents des différentes cellules unitaires en z	125
4.12	Sensibilité des composantes du tenseur de conductivité électrique effective	
	aux conductivités électriques de la matrice polymère chargée en graphite de	100
4 1 0	carbone	126
4.13	Sensibilité des composantes du tenseur de conductivité électrique effective	107
1 1 4	par rapport à la largeur des mecnes	12/
4.14	Sensibilité des composantes du tenseur de conductivité éléctrique effective	107
/ 1E	Plata du bane d'assai de caractérisation électrique des épreuvettes	12/ 120
7.13 1 16	Prioro du Dalle d'essar de caracterisation electrique des epiouvelles	127
7.10	la même énaisseur et différentes longueurs	131
	in memo opulocui ol unici cilico longuculo	TOT

4.17	Résistance électrique totale mesurée de 3 échantillons dans le sens de l'épais- seur, en fonction de leur facteur de forme e/S	132
4.18	posites à renfort tissé	134
A.1	Décomposition géométrique de l'élément (a) et son circuit électrique en x.	154
A.2	Décomposition géométrique de l'élément (a) et son circuit électrique en z.	155
A.3	Décomposition géométrique de l'élément (b) et son circuit électrique en x.	156
A.4	Décomposition géométrique de l'élément (b) et son circuit électrique en z.	157
A.5	Décomposition géométrique de l'élément (c) et son circuit électrique en x.	158
A.6	Décomposition géométrique de l'élément (c) et son circuit électrique en z.	159
A.7	Décomposition géométrique de l'élément (d) et son circuit électrique en x	160
A.8	Décomposition géométrique de l'élément (d) et son circuit électrique en z.	160

Liste des tableaux

1.1	Synthèse de l'utilisation des résines et renforts
2.1	Bilan des estimations de la conductivité transverse d'un composite UD de fraction volumique en fibre de 60%.87
3.1 3.2	Valeurs usuelles du facteur d'élargissement en supposant la loi normale [149]109 Degrés de liberté et niveaux de confiance
4.1	Propriétés électriques des constituants du matériau composite
4.2	Données géométriques du tissu satin 5H
4.3	Propriétés électriques des mèches avec une fraction volumique de fibres de
	40%
4.4	Résultats du tenseur de conductivité électrique diagonal calculées d'un pli
	tissé Satin 5H
4.5	Composantes moyennes mesurées du tenseur diagonal de conductivité élec-
	trique des échantillons de plaque de composite stratifié à plis tissés 133
4.6	Comparaison des composantes du tenseur de conductivité électrique diago-
	nal calculées et mesurées pour un matériau composite stratifié à plis tissés . 133

Remerciements

Les travaux de recherche présentés dans ce mémoire ont été effectués au sein de l'équipe Modélisation des Dispositifs Électromagnétiques (MDE) de l'Institut de Recherche en Énergie Électrique de Nantes Atlantique (IREENA) dans le cadre du projet R&D FUI ACCEA (Amélioration des Conductivités des Composites pour Équipements Aéronautiques) financé en partie par la région Pays de la Loire.

Tout d'abord, je tiens à remercier et à exprimer ma profonde gratitude mon directeur de thèse, Monsieur Didier Trichet, à mon co-directeur de thèse, Monsieur Gérard Berthiau ainsi que mon encadrant de thèse, Monsieur Guillaume Wasselynck, pour m'avoir permis de réaliser cette thèse dans les meilleures conditions et pour leurs précieux conseils. Leurs qualités humaines sont autant à louer que leurs nombreuses compétences scientifiques. Ce fut un réel plaisir de travailler avec vous (« le trio »).

Puis, pour leur participation à l'évaluation de ces travaux, mes remerciements s'adressent également à :

- Madame Afef Lebouc, Directrice de Recherche CNRS, du laboratoire G2ELAB INP Grenoble, pour m'avoir fait l'honneur d'accepter de présider le jury de ma soutenance et pour les échanges judicieux sur mes travaux ;
- Monsieur Lionnel Pichon, Directeur de Recherche CNRS, du laboratoire GeePS, pour avoir lu et jugé mon travail. Sa synthèse pertinente et ses différentes questions soulevées dans le rapport de pré-soutenance ont contribué à l'amélioration de la présentation de la soutenance;
- Monsieur Yvonnick Le Menach, Professeur des Universités, du laboratoire L2EP -Université Lille 1, pour avoir accepté de rapporter sur ce travail et pour ses remarques et critiques qui ont enrichi mes réflexions ;
- Monsieur Marc Audenaert, Responsable partenariats R&D de la société ARKEMA, pour avoir accepté d'examiner ce travail et pour l'intérêt porté à nos travaux.

Ensuite, je souhaite remercier toutes nos collaborateurs industriels et académiques du projet R&D FUI ACCEA, qui de près ou de loin, ont participé à l'aboutissement de ce travail. Je souhaite également dire un grand merci à Monsieur Samuel Branchu du laboratoire GeeM à Saint-Nazaire pour sa disponibilité, sa gentillesse, et d'avoir collaboré activement à ce travail de recherche à travers les nombreux essais que j'ai pu effectuer sur le microscopie électronique à balayage (MEB) au laboratoire GeeM.

Mes remerciements vont aussi à tous les membres de l'IREENA : le directeur du laboratoire Monsieur Mohamed Machmoum, Monsieur Luc Loron directeur du département génie électrique de Polytech'Nantes, tous les professeurs et les maitres de conférences du laboratoire qui ont contribué de près ou de loin à l'aboutissement de ce travail, sans oublier le personnel magnifique : Madame Christine Brohan pour son soutien administratif, Monsieur Franck Judic (super Franck) pour son soutien technique mais surtout pour leur gentillesse et leur bonne humeur.

De même, je tiens à remercier tous mes amis et collègues du laboratoire : Sadock avec qui j'ai partagé le bureau pendant trois ans, Zhihao, Abdoulaye, Kien, Quan, Nassim, Ahmed, Nacereddine, Esseddik, Hao, Jian, Brahim, Linh Dang, Alexis, Alioune, Chenchen, Banda, Sita, Imane, Océane, Ramzi, Asma, etc., pour la bonne ambiance, les échanges quotidiens (scientifiques et autres) et leur sympathie.

Je tiens à faire un clin d'œil à tous mes amis de Saint-Nazaire pour leur soutien moral et qui m'ont permis de décompresser pendant les weekends, en particulier, Almamy, Mbalo, Lacrame, etc.

Enfin, un simple remerciement de quelques lignes ne suffira pas à décrire et à exprimer ma reconnaissance et ma profonde gratitude envers mes parents, mes frères et mes sœurs, pour leur soutien sans faille, leur sacrifice et leur encouragement, pour qui cet aboutissement est tout simplement une fierté et un bonheur.

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Contexte industriel

Au cours de ces dernières années, l'usage des matériaux composites dans différents secteurs industriels (sport, transports, etc.), ne cesse d'augmenter. Cette croissance est motivée principalement par les nombreux avantages qu'offrent ces composites. Ces avantages sont liés à leur excellente résistance à la corrosion et aux solvants, à leur résistance aux chocs élevée, à leur bonne résistance à la fatigue et à leur rapports résistance/masse et rigidité/masse élevés par rapport aux matériaux traditionnels (alliages, aluminium, etc.). Ces qualités sont très prisées dans le secteur des transports en particulier aéronautique où un gain de masse associé aux différents équipements et structures se traduit directement par une baisse de la consommation de carburant, et une augmentation de l'autonomie et de la charge transportable. En outre, l'utilisation de ces matériaux composites apporte aussi une meilleure tenue au feu et une liberté de conception de formes complexes. Ces atouts remarquables ont encouragé leur croissance rapide dans le domaine des transports.



FIGURE 1 : Évolution de l'usage des composites dans les avions : tendance et exemple [1]

Ainsi, un matériau traditionnel pour une application donnée se voit éclipsé par un nouveau matériau composite qui devient plus intéressant pour des raisons économiques, technologiques et éventuellement écologiques. À titre d'exemple, on peut citer le secteur de l'aéronautique, où en 30 ans la part des matériaux composites n'a cessé d'augmenter passant de 5% à 50% tant chez Airbus que chez Boeing (FIGURE. 1).

Problématique

L'usage croissant des matériaux composites dans l'aéronautique est principalement lié à leurs très bonnes propriétés mécaniques. Malgré cela, leur faible conductivités électrique et thermique par rapport à ceux des alliages métalliques, freinent leur utilisation sur certains composants aéronautiques, automobiles, etc. De ce fait, il est nécessaire d'ajouter des fonctions thermique et électrique à ces matériaux composites pendant la phase de fabrication pour répondre à leur manque de fonctionnalités. L'ajout de ces fonctions doit être non intrusive et non destructive pour le comportement mécanique de ces matériaux, et cela en s'intégrant parfaitement dans le processus de mise en œuvre à un moindre coût. La multi-fonctionalité de ces composites offrira des débouchés intéressants en vue d'applications aéronautiques comme le retour du courant des équipements embarqués, l'évacuation des calories de chaleur dégagées par les appareils électroniques, une protection face à la foudre, le dégivrage des ailes d'avion, etc.

C'est dans cette logique que s'inscrit cette thèse dans le cadre du projet FUI ACCEA (Amélioration des Conductivités des Composites pour Équipements Aéronautiques) porté par la société AERAZUR du groupe Zodiac. Ce projet met en collaboration plusieurs partenaires industriels : ZODIAC AEROSPACE, ARKEMA, SAFRAN, INTERTECHNIQUE et académiques des régions Basse-Normandie et Pays de la Loire : LMNO, LTN, et IREENA et des PME : LIFCO, ADCIS et DEDIENNE. Il est soutenu par trois pôles de compétitivité : Mov'eo, ASTech et EMC² et appuyé par deux autres pôles : AeroSpace Valley et Pegase.

L'objectif du projet FUI ACCEA est d'élaborer un matériau composite à matrice thermoplastique hautement multifontionnel et économiquement viable, intégrant des fonctions de conduction électrique et de conduction thermique, en gardant intactes ces propriétés mécaniques. Ce matériau permettra de répondre aux difficultés technologiques des industriels dans la conception des équipements aéronautiques (boîtier électronique, fuselage, par exemple), etc. L'élaboration s'est faite avec des technologies de mise en œuvre innovantes compatibles avec des procédés de fabrication par injection et par thermo-compression avec un assemblage (« film stacking ») par moule RTM (Resin Transfer Molding). L'usage d'une résine polymère chargée a été retenue pour la fabrication des plaques composites permettant ainsi un apport de conductivités. Pour le maintien de propriétés mécaniques un renfort unidirectionnel (UD) en fibres de carbone de type tissu constitué de mèches a été utilisé. Toutefois, la forte complexité géométrique provenant des facteurs d'échelles entre les différentes niveaux d'hétérogénéités de ces composites, leur caractère anisotrope, la non linéarité de leurs propriétés physiques, la difficulté de la validation expérimentale (par rapport aux hypothèses, aux incertitudes sur les grandeurs indirectes mesurées...) etc., rendent difficiles la modélisation et la caractérisation de leur comportement physique en vue de la conception. Dans le cadre restreint de l'étude de ces matériaux composites hautement multifontionnels, nous tenterons de contribuer à améliorer d'une part la compréhension de leur comportement physique et d'autre part de modéliser leurs propriétés physiques une fois mis en forme. Pour cela, il est nécessaire de développer une méthodologie expérimentale, théorique et numérique pour analyser et comprendre leurs propriétés physiques. L'objectif principal de cette thèse est de répondre à cette problématique.

Structuration du projet

Le projet FUI ACCEA est organisé en six « Work Packages (WP) » qui couvrent les différentes étapes de l'étude et caractérisation des composites jusqu'à la réalisation des tests sur les prototypes finaux du panneau composite et du boîtier électronique. Pour mieux répondre au cahier de charges (i.e réalisation d'un matériau composite multi-fonctionnel), le projet s'est appuyé sur le savoir faire et l'expertise des différentes partenaires industriels et académiques suivant la structuration ci-dessous (FIGURE. 2). Pour étudier l'impact des paramètres des procédés, des différentes structures, formulations et pourcentage de renforts, etc., sur le comportement physique (électrique, thermique et mécanique) des composites, les partenaires académiques sont chargés de la réalisation des tâches suivantes :

- Pour la caractérisation électrique des échantillons matériaux composites, l'Institut de Recherche en Énergie Électrique de Nantes Atlantique (IREENA) de Saint-Nazaire ;
- Pour la caractérisation thermique, le Laboratoire de Thermocinétique de Nantes (LTN);
- Pour la modélisation du comportement physique des composites, le Laboratoire de Mathématiques Nicolas Oresme (LMNO) de Caen .

Les premières applications industrielles de ce projet sont pour des composants aéronautiques qui ont vocation à être à la fois légers, conducteurs électriques et dissipateurs thermiques, tels que des supports de composants électroniques, des boîtiers électriques, les éléments de l'inverseur de poussée de la nacelle enveloppant le moteur, le fuselage des futures gammes d'aéronefs, etc. À plus long terme des applications industrielles pour les secteurs automobile, naval et ferroviaire sont également prévues.



Structuration du projet ACCEA

FIGURE 2 : Structuration du projet

Objectifs de la thèse

Cette thèse s'inscrit dans une démarche d'identification des propriétés électriques des matériaux composites complexes, et vise à contribuer à une meilleure maîtrise de l'impact des paramètres des procédés, des différentes structures, formulations et pourcentage de renforts, choix des polymères pour la matrice, etc., qui de fait auront des répercussions sur le comportement électrique final de ces composites. Elle s'articule autour d'une approche numérique et d'une approche expérimentale, dont les objectifs sont les suivants :

- Approche numérique : l'objectif est le développement d'un modèle numérique capable de prédire le tenseur de conductivité électrique du matériau composite en tenant compte du phénomène de percolation continu (statique) et de l'architecturation de celui-ci. L'approche numérique sera de type **multi-échelle** afin de prendre en compte les différentes niveaux d'hétérogénéités des composites.
- Approche expérimentale : l'objectif est le dimensionnement et la réalisation d'un banc d'essai permettant l'identification des trois composantes du tenseur de conductivité électrique dans les directions principales du plan des éprouvettes. Cette approche pourra nécessiter l'utilisation d'outils numériques en cas d'identification par inverse.

Organisation du manuscrit

Ce manuscrit est scindé en quatre chapitres comme suit.

- Chapitre 1 : ce chapitre présente un état de l'art général sur les matériaux composites, leurs caractéristiques principales et leur comportement électrique. Une partie de ce chapitre est consacrée à l'introduction des outils de prédiction de la conductivité électrique effective et de caractérisation expérimentale de la conductivité électrique.
- Chapitre 2 : ce deuxième chapitre présente la démarche d'homogénéisation multiéchelle développée pour la modélisation électrique des composites stratifiés à renfort unidirectionnel avec une prise en compte de la **percolation** électrique.
- Chapitre 3 : ce chapitre est consacré au développement et à la description générale de notre banc expérimental de caractérisation du tenseur de conductivité électrique. Il rend compte du choix, de la justification, de l'optimisation et validation de la méthode de mesure ainsi que du protocole de mesure utilisé. Une analyse de la méthode a été faite pour déterminer rigoureusement les incertitudes de mesures des différentes grandeurs globales mesurées.
- **Chapitre 4 :** ce chapitre met en évidence, l'application des outils de modélisation électrique et de caractérisation expérimentale développés, respectivement, aux chapitres 2 et 3 à un matériau composite stratifié à plis tissés satin 5H classiquement utilisé dans l'industrie aéronautique.

1

ÉTAT DE L'ART

Sommaire

1.1	Introd	luction	21
1.2	Matér	iaux composites	21
	1.2.1	Définition	21
	1.2.2	Caractéristiques générales	21
	1.2.3	Constituants des matériaux composites	22
	1.2.4	Architecture des pièces composites	26
1.3	Génér	alités sur les propriétés physiques	29
	1.3.1	Cas des matériaux composites stratifiés	29
	1.3.2	Moyens d'améliorations des propriétés physiques	30
	1.3.3	Intérêt de la modélisation et d'un banc expérimental	34
1.4	Outils	de modélisation physique des matériaux	35
	1.4.1	Formalisme d'homogénéisation	36
	1.4.2	Modèles de prédictions des propriétés physiques	37
	1.4.3	Conclusion et démarche de modélisation retenue	48
1.5	Carac	térisation expérimentale des matériaux	49
	1.5.1	Méthodes sans contact	50
	1.5.2	Méthodes avec contact	51
	1.5.3	Bilan sur la caractérisation expérimentale	57
1.6	Concl	usion	57

1.1 Introduction

L'élaboration de nouveaux matériaux composites multifonctions et l'identification de leurs propriétés physiques sont devenus un sujet majeur pour les industriels des secteurs aéronautique, spatial, etc. Dans ce chapitre, qui vise à donner les notions de base sur lesquels portent les travaux de la présente thèse, nous présenterons d'abord les matériaux composites dans leur généralité en exposant brièvement leurs caractéristiques principales (définition, constitution, structures, etc.). Puis, nous décrirons leurs propriétés physiques en nous focalisant plus particulièrement sur leurs mécanismes de conduction (phénomènes de percolation et de transfert de chaleur) d'un point de vue phénoménologique et en définissant les facteurs influant sur ces derniers. Ensuite, nous présenterons les approches de modélisation existantes qui sont largement utilisées dans la littérature pour décrire le comportement physique effectif de ces matériaux composites. Enfin, nous énumérerons les différentes méthodes de mesure pouvant être utilisées pour l'identification de la conductivité électrique des matériaux composites, de même que les verrous scientifiques associés à cette identification et à la modélisation. Une synthèse comparative des avantages et des inconvénients des méthodes de mesure sera détaillée afin de compléter cette étude bibliographique.

1.2 Matériaux composites

1.2.1 Définition

Un matériau composite résulte par définition de l'association, à l'échelle microscopique, d'au moins deux constituants de natures différentes non miscibles avec une forte capacité de pénétration dont les propriétés physiques intrinsèques respectives se complètent avec osmose. Le nouveau matériau à microstructure hétérogène ainsi constitué, possède à l'échelle macroscopique un ensemble de propriétés physiques, qu'il serait impossible d'obtenir avec chacun de ces constituants pris séparément.

1.2.2 Caractéristiques générales

Un matériau composite est constitué d'une ou de plusieurs phases discontinues réparties dans une phase continue. La phase continue est appelée la matrice, la phase discontinue est appelée le renfort (FIGURE 1.1). Le renfort, qui est une sorte d'armature ou squelette, assure l'essentiel de la tenue mécanique du composite. La matrice, qui joue le rôle de liant, protège le renfort de l'environnement, le maintien dans sa position initiale et assure la transmission des efforts. Par conséquent, les propriétés physiques des matériaux composites résultent des propriétés physiques intrinsèques de ces constituants (matrice et renfort), de leur interaction, de leur distribution, de leur nature, de leur forme, de leur fraction volumique (ou massique), etc.



FIGURE 1.1 : Constituants d'un matériau composite [2]

1.2.3 Constituants des matériaux composites

Les constituants de base d'un matériau composite sont la matrice et le renfort. Le renfort est fréquemment de forme fibreuse (ou filamentaire) ou sous forme de particules. La matrice est couramment de nature organique ou minérale. Les matrices faisant le plus d'objet de recherches et développements dans l'industrie sont celles de nature organiques (les résines thermodurcissables et thermoplastiques). Dans certains composites polymères des « charges » et/ou des additifs peuvent être incorporés au sein de la matrice, comme agent anti-UV ou/et pigments de coloration, pour assurer l'adhérence renforts/matrice, pour diminuer les coûts de production, etc. En outre, ils peuvent aussi modifier considérablement les propriétés mécaniques [3], thermiques [4], électriques [5, 6], magnétiques [7], etc., de la matrice polymère.

1.2.3.1 Les renforts

Les renforts sont majoritairement de nature organique (aramide, etc.) ou minérale (carbone, verre, bore, carbure de silicium, etc.) et de formes diverses. En fonction de leur forme (voir la FIGURE 1.2), ils peuvent être réunis en deux grands groupes : les renforts sous forme de particules (ou de fibres courtes) et les renforts sous forme de fibres longues.

Les renforts en forme de particules ou de fibres courtes : ils sont généralement constitués de charges conductrices (graphite, nanotubes de carbone, noir de carbone, Au, Ag, Cu, silice, BaTiO3..., par exemple) de formes variées et additifs, ou de fibres discontinues



FIGURE 1.2 : Les différentes types de renforts

(fibres courtes, coupées, broyées ...), etc. (FIGURE 1.2), dispersés de manière aléatoire ou orientés dans une matrice. L'usage de ce type de renfort dépend des propriétés physiques souhaitées, il permet d'améliorer certaines propriétés des matériaux composites ou des matrices polymères (rigidité, tenue en température, etc.). Ils sont aussi utilisés comme charge pour réduire les coûts de production de certains matériaux composites.

Les renforts en forme de fibres longues : ils sont continus et, d'ordinaire, en carbone ou en verre, introduits dans une matrice polymère, pour améliorer principalement les propriétés mécaniques du matériau composite global. De surcroît, comme les fibres de carbone sont conductrices de courant électrique, leurs arrangements et leurs orientations dans la matrice permettent d'améliorer les propriétés électriques tout en modulant les propriétés mécaniques, du matériau composite final. Par ailleurs, on peut agir sur l'arrangement et l'orientation des renforts dans des directions privilégiées pour réaliser différentes armures de renforts (2D ou 3D) adaptées aux propriétés physiques souhaitées, allant des renforts placés dans une seule direction, dits UniDirectionnels (UD), à des bidirectionnels (tissés, tressés, ...) et enfin des renforts multi-axiaux. Quelques unes de ces armures sont représentées sur la FIGURE 1.3. Ces armures sont commercialisées sous forme de nappes (ou plis unitaires) qui peuvent être imprégnées de résine (« pre-pregs »), on parle alors de nappes pré-imprégnées, ou sèches. De ce fait, lors de l'élaboration du matériau composite définitif la matrice (résine polymère, par exemple) vient imprégner les renforts selon le procédé de fabrication (injection, thermo-compression, extrusion, ...). Les armures sont réparties en deux grandes familles :

- Armures UniDirectionnelles (UD) : les fibres sont orientées dans une même direction qui sera la direction principale de contrainte. De ce fait, les propriétés physiques sont plus élevées dans la direction principale par rapport aux autres directions (transverses au sens d'orientation des fibres);
- Armures tissées : elles se composent de fils de chaîne et de trame perpendiculaires entre eux, obtenues par tissage (bi ou tri directionnel) ou par superposition de

nappes unidirectionnelles. Le mode d'entrecroisement des fibres continues caractérise les diffèrent tissus. On distingue parmi ces tissus (en 2D) : le satin, la sergé, le taffetas, etc. [8], [9].



FIGURE 1.3 : Les principaux types d'armatures 2D de renforts de fibres continues

Il est également possible de réaliser des structures de renforts hybrides en tissant des fibres de natures différentes ou en superposant des tissus ou des nappes de fibres de natures différentes.

Ainsi, sur la présentation des différents renforts, on retiendra que les matériaux composites à renforts en forme de fibres longues de carbone ont globalement un comportement macroscopique anisotrope. Ceux à renforts en forme de particules distribuées aléatoirement ont un comportement macroscopique isotrope tandis que ceux orientées suivant une direction privilégiée ont un comportement macroscopique anisotrope [10].

1.2.3.2 La matrice

Communément appelée le liant, la matrice a pour rôle de transférer les efforts mécaniques aux renforts et de les protéger de l'environnement extérieur tout en assurant la cohésion de la structure du matériau. Elle apporte une tenue mécanique à la structure et donne la forme finale au produit. Elle est généralement composée de matériaux de nature polymères (résines) organiques ou minéraux. Ceux de nature organique sont les plus employés, notamment les résines **thermodurcissables** (TD) et les résines **thermoplastiques** (TP). Ces deux types de résines possèdent la capacité de pouvoir être moulés ou mis en forme, pour donner soit un produit fini, soit un produit semi-fini dont la forme peut être modifiée. Toutefois, le choix d'une matrice est bien évidemment dicté par les performances souhaitées (caractéristiques mécaniques, tenue de vieillissement, etc.), mais aussi par l'adéquation de la résine (cinétique de réaction et viscosité) avec le procédé de mise en œuvre envisagé [11].

D'une part, les résines **thermodurcissables** ne peuvent être mises en forme qu'une seule fois, vu qu'elles possèdent les propriétés de passer de façon irréversible d'un état liquide à un état solide. Elles permettent d'avoir un taux de remplissage massique conséquent du renfort dans la matrice par rapport aux polymères thermoplastiques [2]. Elles sont aussi infusibles et insolubles après un traitement physico-chimique ou thermique. Du coup, cela pose un problème de recyclage à cause de leur particularité d'être mise une seule fois en forme. Les principales résines thermodurcissables utilisées dans les composites sont les résines époxy (ou époxydes) et les résines phénoliques [12].

D'autre part, les résines **thermoplastiques** possèdent les propriétés de pouvoir être mises en forme plusieurs fois d'un état solide à un état pâteux par chauffage et refroidissement successifs. Étant donné qu'elles peuvent être alternativement ramollies par chauffages et durcies par refroidissement dans un intervalle de température spécifique au polymère étudié, elles sont facilement recyclées et assemblées par fusion [13], dès lors qu'on connaît leur température de fusion. Les principales résines thermoplastiques utilisées dans les composites sont le polypropylène (PP), les polyamides (PA) et le poly-éther-éthercétone (PEEK) [12].

Résines			Renforts	
		Verre	Carbone	Aramide
Thermodurcissables (TD)	Phénolique	GD	-	-
	Epoxyde	HP	HP	HP
Thermonlastiques (TP)	PP	GD	-	-
mennoplastiques (11)	PA	GD et HP	-	-
	PEEK	HP	HP	HP

TABLE 1.1 : Synthèse de l'utilisation des résines et renforts.

La TABLE 1.1 présente une synthèse des combinaisons matrices/renfort les plus couramment utilisées donnant lieu à des composites « hautes performances »(HP) ou « grande diffusion » (GD). On notera que les composites HP se distinguent essentiellement des composites par leurs meilleures propriétés mécaniques (rigidité, résistance à la traction) et par leur coût plus élevé [14]. Tandis que le taux de renfort dans les composites GD avoisine 30%, celui de composites HP est supérieur à 50%.

1.2.4 Architecture des pièces composites

Outre leurs constituants les matériaux composites, peuvent aussi être caractérisés par leur architecture. De ce fait, on distingue trois principales architectures au sein des pièces de matériaux composites couramment citées dans la littérature : les monocouches, les sandwichs et les stratifiés.

1.2.4.1 Les monocouches

Ils sont généralement constitués de résines ou matrices dans lesquelles sont introduits des renforts en forme :

- de fibres courtes ou de particules (par exemple, poudres : métalliques, de graphite) dispersées aléatoirement (FIGURE 1.2) pour réaliser des plaques de composites en plastiques renforcés.
- de tissus multidirectionnels volumiques (3D,4D, etc.) pour concevoir des plaques de composites volumiques (FIGURE 1.4). Ils ont été introduits pour des besoins spécifiques de l'aéronautique. En plus des intérêts spécifiques, ils permettent d'obtenir des caractéristiques mécaniques très élevées, avec un comportement physique approximativement isotrope en volume.



FIGURE 1.4 : Tissages multidirectionnels volumiques 3D [15].

1.2.4.2 Les sandwichs

Ils sont composés de deux revêtements (ou peaux) de faibles épaisseurs (possédant de bonnes caractéristiques en traction). Ces peaux sont collées ou soudées de part et d'autre d'une âme constituée d'un matériau ou d'une structure légère de forte épaisseur ayant de bonnes propriétés en compression. Cela permet de constituer un matériau permettant de concilier légèreté et rigidité avec des atouts considérables (une très bonne isolation thermique, etc.). Cependant, ils présentent un certain nombre d'inconvénients liés au fait de leur faible capacité à résister au feu, à isoler les sons acoustiques (vu qu'ils n'amortissent pas le son), etc.



FIGURE 1.5 : Matériau composite en structure sandwich

1.2.4.3 Les stratifiés

Les stratifiés sont constitués d'un empilement successif de plusieurs plis (ou couches) orientés par rapport à un référentiel commun aux plis et désigné comme référentiel stratifié (FIGURE 1.6). L'orientation θ des plis est obtenue par rapport à ce référentiel, c'est l'opération de drapage. Le pli (strate) est l'élément de base de l'architecture d'un matériau composite stratifié, avec une épaisseur d'environ 140 μ m [16]. Il est considéré comme un semi-produit du matériau composite composé de renforts imprégnés de matrice (résine polymère, etc.). On distingue plusieurs types de plis : le pli unidirectionnel (armure unidirectionnelle FIGURE 1.3) et le pli tissé (armure tissée FIGURE 1.3). De ce fait, compte tenu des propriétés des renforts, de leur l'orientation et de l'empilement des plis, ces matériaux composites stratifiés possèdent des propriétés physiques fortement anisotropes. De plus, ils permettent de créer des matériaux composites aux propriétés mécaniques orientées de façon optimale afin de mieux répondre aux sollicitations mécaniques de la structure.

On distingue différents types de stratifiés :

- les stratifiés symétriques, dont les couches empilées sont disposées symétriquement par rapport à leur plan médian (plan de symétrie) ;
- les stratifiées avec des séquences, successifs comprenant un indice qui indique le nombre de répétitions;
- les stratifiés hybrides, constitués d'un empilement successif de plis, avec des renforts de nature différente (par exemple, carbone, kevlar, etc.), etc.



FIGURE 1.6 : Matériau composite stratifié à plis UD

Dans le cadre de cette thèse, les matériaux composites à architectures stratifiés avec des plis tissés 2D (satin 5H) feront l'objet de nos études. Ces plis tissés satin 5H ont été choisis pour leurs très bonnes propriétés mécaniques. Malgré cela, leur usage sur certains besoins spécifiques en aéronautique est freiné par leurs faibles conductivités (électrique et thermique) par rapport aux matériaux traditionnels (alliages, aluminium, etc.). Par conséquent, une fonctionnalisation électrique et thermique des composites stratifiés sans pour autant dégrader ces propriétés mécaniques devient une nécessité pour les industriels.

1.2.4.4 Fonctionnalisation électrique et thermique des composites stratifiés

La fonctionnalisation électrique et thermique des composites stratifiés est introduite pour des besoins spécifiques du projet de R&D FUI ACCEA (Amélioration des Conductivités des Composites pour Équipements Aéronautiques). Ces besoins spécifiques s'articulent autour des points suivants :

- supprimer des éléments métalliques en développant l'usage des thermoplastiques dans des sous-ensembles utilisés dans l'aéronautique;
- dissiper les calories produites par des systèmes électriques ou électroniques ;
- diminuer les endommagements (multi-délaminage et perforation) dus aux impacts de foudre;
- retour du courant des équipements embarqués à la masse ;
- conception de boîtier d'équipements électroniques (application au blindage électromagnétique).

Malgré leurs nombreux avantages, les matériaux composites restent extrêmement sensibles aux sollicitations de nature électrique (par exemple, le retour du courant à la masse et au foudroiement) et thermique, la conductivité (thermique et électrique) de ces matériaux composites étant beaucoup plus faible que celle des matériaux matériaux traditionnels (alliages, aluminium, etc.). Par conséquent, leur faible conductivité est un inconvénient majeur en cas de sollicitations électromagnétiques et thermiques, notamment la foudre, car ils ne joueront plus le rôle de cage de Faraday qu'assurait l'aluminium et ne fourniront pas les mêmes assurances de blindage que les matériaux métalliques. Pour ces raisons, il y a donc une nécessité pour les industriels du secteur aéronautique en particulier, d'ajouter de nouvelles fonctions électriques et thermiques à ces matériaux composites [17]. Dans la section suivante, une brève description sur la généralité des propriétés physiques des matériaux composites stratifiés est présentée. Ensuite, une synthèse sur les moyens d'améliorer leur comportement physique est détaillée.

1.3 Généralités sur les propriétés physiques

1.3.1 Cas des matériaux composites stratifiés

La maîtrise des sollicitations de nature électrique et thermique des matériaux composites stratifiés nécessite une très bonne connaissance de leurs propriétés électromagnétiques et thermiques. Les propriétés électromagnétiques sont définies par la perméabilité magnétique μ , la conductivité électrique σ et la permittivité électrique ε . Toutefois, si la matrice polymère et les renforts sont amagnétiques, la perméabilité magnétique est alors égale à celle du vide. Les propriétés thermiques sont quant à elles définies par la conductivité thermique λ , la masse volumique ρ , la chaleur spécifique C_p et le coefficient d'échange convectif h. Ces propriétés sont toutes dépendantes de la température.

La nature complexe de ces composites stratifiés et l'interdépendance des phénomènes physiques produisent un certain nombre de contraintes de simulation et de caractérisation

liées au facteur d'échelle, à l'anisotropie et non linéarité des propriétés physiques et au caractère tridimensionnel des phénomènes (percolation, diffusion, etc.) qui nécessiteront d'être explorées en détail. L'identification et l'intégration de ces propriétés dans un modèle mathématique de calcul est une phase préalable pour aborder la compréhension et l'optimisation des différentes sollicitations des matériaux composites stratifiés. De plus, la conduction (thermique et électrique) dans ces matériaux composites est grandement facilitée dans le plan du stratifié (x-y) par la présence de fibres longues de carbone (bons conducteurs électriques et thermiques, par exemple, résistivité électrique $\sim 10^{-5} \Omega.m$ [18, 19]), tandis qu'il est quasi-isolant dans la direction perpendiculaire au plan de stratification (z). Cette difficulté de conduction dans la direction (z) s'explique par la présence entre les plis de couches de matrice polymère électriquement et thermiquement isolantes rendant leur comportement électrique et thermique fortement anisotrope. Ces couches de matrice polymère isolantes peuvent être soumises à des sollicitations électromagnétiques et thermiques. Pour répondre au manque de fonctionnalité de ces matériaux composites stratifiés différents moyens d'amélioration de leurs propriétés électriques et thermiques ont été entrepris dans la littérature. Dans la sous-section suivante, nous allons nous focaliser sur ces moyens d'amélioration potentiellement utilisables à cette fin.

1.3.2 Moyens d'améliorations des propriétés physiques

Pour améliorer les propriétés physiques en particulier électriques et thermiques des matériaux composites stratifiés dans les trois directions de l'espace afin de remplacer leurs équivalents métalliques, plusieurs pistes peuvent être abordées. D'une part, on peut doper la matrice polymère de charges intrinsèquement conductrices (nanotubes de carbone, poudre : métalliques et graphite, etc.) pour la rendre plus conductrice. Le mélange (matrice polymère + charge) vient ensuite imprégner le renfort (plis tissés, plis unidirectionnels, etc.). D'autre part, on peut agir sur l'architecture du renfort (armures des plis, plan de drapage...) et la fraction volumique de fibres de carbone pour améliorer ces propriétés. De même, on peut agir sur la surface du matériau composite finale en la rendant conductrice de manière à en évacuer les charges.

Premièrement, l'intégration de charges conductrices dans des matrices polymères permet d'améliorer ou de renforcer leurs propriétés mécaniques [20, 21, 22] ou de leur conférer de nouvelles propriétés ou fonctions spécifiques : électriques [20, 23, 17, 22, 24], thermiques[4, 21, 17], etc. Or, la mise en œuvre de ces matrices polymères chargées peut engendrer des difficultés d'obtention d'une dispersion homogène des charges conductrices dans la matrice polymère, intrinsèquement isolante, à l'échelle microscopique. Cela peut entraîner la formation de zones dépourvues de charges conductrices. Ces inhomogénéités dans la distribution aléatoire des charges (ou particules) peuvent ne pas induire la formation de chemin continu ou réseaux conducteurs de charges dans ces matrices polymères. Par conséquent, elles influencent la quantité de charges nécessaire pour percoler et permettre à la matrice polymère chargés d'être conductrice d'électricité.



FIGURE 1.7 : Courbes de percolation électrique de polymères chargés : (a) en PANI/Polyamide-11 et (b) en Carbone/Polyéthylène téréphtalate [25].

Toutefois, des fractions volumiques de charges conductrices élevées conduisent à une dégradation des propriétés mécaniques de la matrice polymère chargée résultante [26]. De surcroît, une faible fraction volumique de charges permet de réduire les coûts de production. Par contre, des fractions volumiques de charges élevées dans la matrice polymère augmentent la viscosité de cette dernière, ce qui engendre des difficultés de mise en œuvre de film de matrice polymère chargée de faible épaisseur. D'ailleurs, des études [27, 28, 29] récentes vont dans ce sens afin de réduire la fraction volumique des charges conductrices au maximum en optimisant les procédés de mise en œuvre, en opérant par exemple sur la taille et la morphologie des charges (plus particulièrement sur le rapport d'aspect longueur / largeur des charges) et de leurs distributions. La FIGURE 1.7 illustre un exemple de l'influence de la morphologie des charges conductrices sur la conductivité électrique en particulier le seuil de percolation qui sera exploré en détail dans les sections suivantes. Dans la même optique, C.Y. Li et al. [30] ont démontré que l'augmentation du rapport d'aspect des nanotubes qui permet de caractériser l'anisotropie de la forme des charges [31], tend à réduire le seuil de percolation. Pour des nanotubes droits et ondulés, la relation entre le seuil de percolation et le rapport d'aspect est approximativement logarithmique linéaire comme l'illustre la FIGURE 1.8.

À l'opposé de la conduction électrique, la conduction thermique des matrices polymères



FIGURE 1.8 : Seuil de percolation en fonction du rapport d'aspect pour des nanocomposites (mélange NTCs/époxy) de formes différentes [30].

chargées ne dépend pas de la formation de chemin ou réseau continu de charges pour transférer de la chaleur. La compréhension de leur mode conduction thermique est liée aux mécanismes de transfert thermique : vibrations moléculaires et mouvements des électrons libres (transport des photons) [32, 33]. Par ailleurs, contrairement au contraste de conductivité électrique des constituants du matériau composite qui s'étale sur plus de 24 ordres de grandeur, celui de la conductivité thermique varie très peu (~3 ordres de grandeur) [32]. Des études ont aussi illustré qu'à l'image de la conductivité électrique, la conductivité thermique des matrices polymères chargées était considérablement dépendante d'un large éventail de facteurs, aussi bien des procédés de mise en œuvre, de la porosité, de la structure et de la morphologie des charges dopant que de la nature de la matrice polymère isolant [34, 35, 36].

Deuxièmement, dans les matériaux composites stratifiés la conduction se fait globalement dans le sens des fibres, du fait de la nature isolante de la matrice polymère [37, 38]. Vu que les fibres de carbone possèdent des propriétés électriques et thermiques intrinsèques intéressantes, on peut donc agir sur le choix de la structure de renforts (fraction volumique, armures des plis, le plan de drapage, etc.) pour améliorer les propriétés électriques et thermiques de ces composites. D'ailleurs, une alternative consiste à greffer [39, 40, 41, 42, 43] directement des charges en particulier des nanotubes de carbone (NTCs) sur la surface des fibres de la structure de renfort (FIGURE 1.9) ou bien à aligner [44, 45, 46, 41] aux interfaces entre les plis des NTCs (FIGURE 1.10). L'ensemble est ensuite imprégné par une matrice polymère afin d'aligner les NTCs dans la direction radiale et d'assurer un renforcement optimal dans la direction perpendiculaire au plan de stratification (z). Cependant, la viscosité des matrices polymères peut limiter rigoureusement l'infiltration des NTCs dans celles-ci. Bien que ces alternatives permettent d'améliorer considérablement les propriétés électriques et thermiques des composites stratifiés, leurs procédés de mise en œuvre restent d'un accès onéreux et laborieux.



FIGURE 1.9 : Images MEB de la morphologie des fibres de carbone : (a) avant greffage de NTCs ; (b) après greffage à la surface de fibres de carbone [43].



FIGURE 1.10 : Aligment des NTCs aux interfaces entre les plis d'un composite startifié [46].

Un autre moyen d'amélioration par rapport à la structure du renfort est l'insertion d'un grillage métallique (« Wire Mesh ») dans le composite stratifié [47, 48]. En revanche, cette insertion peut dégrader les propriétés mécaniques du composite stratifié final (avec une perte mécanique jusqu'à ~ 20% sur la contrainte admissible), ajouter une masse (surpoids) et compliquer la mise en œuvre.

Enfin, on peut améliorer le comportement électrique et thermique des composites stratifiés en rendant leur surface conductrice par l'usage de revêtements conducteurs grâce à des peintures conductrices [49]. Par contre, ce moyen d'amélioration entraîne en général un coût additionnel élevé, des étapes supplémentaires pendant la fabrication et un entretien régulier à cause de leur faible résistance aux éraflures.

Dans le cadre de ce projet FUI ACCEA, l'objectif principal est d'améliorer les propriétés électriques et thermiques des composites stratifiés sans pour autant dégrader leurs performances mécaniques. Les moyens d'amélioration entrepris sont d'abord de doper une matrice polymère avec des charges conductrices (poudre en graphite de carbone métallisée) pour la rendre conductrice. Ensuite, cette matrice polymère dopée est utilisée pour imprégner la structure du renfort en fibres en utilisant un procédé de mise en œuvre RTM (Resin Transfer Molding). Par ailleurs, pour étudier l'impact des différentes structures de charges, formulations et % de charges conductrices, etc., sur les caractéristiques électriques, thermiques et mécaniques de ces composites stratifiés, la modélisation et la caractérisation expérimentale de leur comportement physique est nécessaire, d'où l'intérêt de mettre en place des modèles et des bancs expérimentaux.

1.3.3 Intérêt de la modélisation et d'un banc expérimental

La modélisation des matériaux composites permet d'aborder la compréhension et l'analyse de leur comportement physique à partir de modèles numériques et/ou analytiques. Ces modèles s'appuient sur des hypothèses en faisant abstraction de certains phénomènes physiques et interférences qui existent pourtant dans la réalité pour réduire la complexité du calcul. Or, il suffit parfois de modifier un peu ces hypothèses pour modifier les conclusions de ces modèles. C'est pourquoi, il est parfois périlleux de valider de manière correcte ces modèles de calculs. Il devient alors nécessaire de disposer d'un banc expérimental permettant d'identifier les propriétés physiques de ces composites d'une part, et d'autre part, de comprendre et d'analyser leur comportement. Ces résultats permettront de vérifier un certain nombre d'hypothèses et de valider ou de rejeter les modèles qui sont utilisés.

Cependant, compte tenu du coût élevé des campagnes d'essais expérimentaux d'identification des comportements, la modélisation de leur comportement physique s'avère plus pertinente et moins coûteuse si les hypothèses sont bien posées. En effet, tout changement de milieu comme par exemple la modification de la fraction volumique de fibres dans le composite, nécessite une ré-identification des propriétés physiques. Par ailleurs, pour la modélisation et la caractérisation expérimentale du comportement physique de ces composites, on bute sur un certain nombre de contraintes scientifiques et expérimentales liées au facteur d'échelle, à l'anisotropie, à la non linéarité des propriétés physiques et au caractère tridimensionnel des phénomènes (percolation, diffusion...), etc. Par conséquent, pour résoudre ces contraintes, il va nous falloir mettre en place des outils de modélisation et de caractérisation expérimentaux adaptés à la complexité de ces matériaux composites.

1.4 Outils de modélisation physique des matériaux

Vu les coûts importants de production des matériaux composites, des outils numériques ont été développés depuis des années pour étudier leur comportement mécanique sous différentes contraintes. Pour étudier le comportement physique effectif en particulier électrique et thermique de ces matériaux composites, ces outils peuvent aisément être adaptés à partir d'observations faites à différentes échelles du composite, étant donné que les outils de calcul actuels ne permettent pas de modéliser directement les propriétés physiques globales de la structure d'un matériau composite. Par conséquent, pour modéliser leur comportement physique effectif ou apparent, des étapes de transitions d'échelles sont nécessaires. L'homogénéisation permet de réaliser ces transitions d'échelles. À cet effet, deux approches se présentent [13] :

- → une approche expérimentale qui consiste à définir le comportement physique à partir de l'expérimentation (mesure de résistance, d'impédance, de champ magnétique, de température, etc.);
- \rightarrow et **une approche multi-échelle** qui consiste à définir le comportement global à l'échelle macroscopique grâce aux informations dont on dispose à une échelle microscopique (fraction volumique, taille, forme, mode distribution, orientation, etc.).

Dans cette section, nous décrirons uniquement les différents modèles issus de l'approche multi-échelle pour estimer la conductivité électrique effective de matériaux à microstructure hétérogènes que propose la littérature. Et pour chaque modèle présenté, nous apprécierons l'aptitude du modèle proposé à concorder aux besoins de notre d'étude. Toutefois, ces deux approches peuvent être couplées, vu que l'approche multi-échelle peut servir de point de départ (initialisation des propriétés physiques) aux algorithmes de l'approche expérimentale par l'intermédiaire d'une méthode inverse. Les outils de l'approche expérimentale sont détaillés dans la sous-section 1.5.

Cette section présente dans un premier temps une description rapide du formalisme d'homogénéisation nécessaire à la détermination des propriétés effectives des composites, c'està-dire leur comportement homogène équivalent. Dans un second temps, nous rappellerons les différentes méthodes analytiques et numériques d'estimation de la conductivité électrique effective d'un matériau à microstructure hétérogène issue du formalisme de d'homogénéisation qui sont couramment utilisées dans la littérature. Enfin, nous conclurons sur la démarche de modélisation retenue issu de ces analyses. Dans cette section, nous focaliserons en particulier sur les propriétés électriques, objet de cette thèse.

1.4.1 Formalisme d'homogénéisation

Le formalisme d'homogénéisation est fondé sur une décomposition en différents niveaux de la microstructure hétérogène du matériau composite, chacun représentant une échelle. Pour coordonner les différents niveaux entre eux, une démarche ascendante est utilisée. Cette démarche consiste à commencer par simuler le comportement microscopique du composite, et à utiliser ce résultat pour déterminer celui du niveau supérieur (du dessus), ainsi de suite, jusqu'au résultat de son comportement macroscopique homogène équivalent. Par conséquent, leur comportement effectif est recherché à partir d'informations plus ou moins fines sur la distribution statistique des propriétés topologiques et physiques des phases constitutives. Dans le cas des matériaux composites à microstructures hétérogènes relativement simples où l'on ne distingue que deux échelles, ces dernières sont définies comme suit :

- une échelle microscopique, de dimension *d* (tailles des hétérogénéités) de l'ordre de 1 μ m à 100 μ m, où on peut observer la matrice et les renforts ;
- et une échelle macroscopique, de dimension *L* (taille de la structure) d'ordre supérieur à 1 mm, où on peut considérer le matériau comme homogène.



FIGURE 1.11 : Illustration du formalisme de l'homogénéisation [50]
Le passage des propriétés microscopiques aux propriétés physiques effectives (macroscopiques), se fait en définissant une nouvelle échelle intermédiaire de dimension l qui représente la taille du Volume Équivalent Représentatif (VER) fournissant les propriétés homogènes. Dès lors, certaines conditions d'échelles doivent être satisfaites, telles que les tailles des différentes échelles doivent respecter la relation $d \ll l \ll L$. De ce fait, si cette relation est satisfaite, le VER peut être remplacé par un « Milieu Homogène Équivalent » (MHE). La FIGURE1.11 illustre la description de la démarche du formalisme de l'homogénéisation. Toutefois, la taille du VER, dans le formalisme de l'homogénéisation des propriétés physiques effectives doit respecter un certain nombre de contraintes :

- ses propriétés physiques moyennes n'évoluent pas lorsque ses dimensions augmentent ;
- le comportement physique moyen varie très peu (voir identique) pour différents VER de même taille (avec un tirage aléatoire de la microstructure du VER) ;
- et les conditions aux limites n'influent pas sur son comportement moyen.

Par ailleurs, la prédiction des propriétés physiques équivalentes de ces composites font l'objet de plusieurs modélisations (analytiques et/ou numériques) dans la littérature, qui font toutes appel au formalisme d'homogénéisation.

1.4.2 Modèles de prédictions des propriétés physiques

Il existe de nombreux modèles numériques et analytiques de prédiction du comportement physique effectif des matériaux composites qui ont été proposés dans la littérature avec des précisions plus ou moins correctes. Ces modèles, qui font tous appel au formalisme de l'homogénéisation, dépendent principalement des propriétés physiques intrinsèques de ces constituants et de la fraction volumique de renforts. Pour des composites à renfort unidirectionnel, ces modèles donnent généralement des résultats de prédiction satisfaisants, dans le cas de la conduction longitudinale à l'axe d'orientation des fibres de carbone. Par contre, ces modèles ont été mis en défaut par rapport à la conduction transverse du fait qu'ils ne prennent pas en compte les mécanismes de conduction en particulier électrique au sein du Volume Équivalent Représentatif (VER). Ces deux mécanismes de conductions électriques sont dus en partie aux phénomènes de percolation. En outre, pour chaque modèle présenté nous examinerons sa capacité à répondre aux besoins de notre étude.

1.4.2.1 Modèles analytiques

Nous proposons ici d'établir un récapitulatif des modèles analytiques les plus utilisés pour prédire les propriétés électriques des matériaux à microstructure hétérogène. Ces modèles reposent sur l'écriture de formes analytiques le plus souvent empiriques et plus simples d'usage. Ainsi, dans un premier temps, nous présenterons les bornes d'encadrement (ou modèles d'encadrement) des propriétés électriques effectives. Puis, dans un second temps nous exposerons les différents modèles d'estimation des propriétés électriques effectives des matériaux à microstructure hétérogène. Enfin, nous présenterons les modèles d'assemblage géométrique.

Bornes d'encadrement

Les modèles les plus connus et les plus basiques sont ceux qui définissent les bornes de WIENER et les bornes HASHIN et SHTRIKMAN.

Bornes de WIENER : elles sont basées sur la loi des mélanges d'au moins deux phases supposées être arrangées parallèlement les unes par rapport aux autres. Elles sont établies par exemple pour la conductivité électrique à partir du modèle des couches en série et en parallèle en supposant que le courant traversant les couches est unidirectionnel. De ce fait, dans le cas d'un matériau composite hétérogène constitué de deux phases, une matrice de conductivité électrique σ_m et de renforts de conductivité électrique σ_f , de fraction volumique ϕ_f , sa conductivité électrique effective est alors bornée par :

$$\sigma_{W^-} \preceq \sigma_{eff} \preceq \sigma_{W^+} \tag{1.1}$$

avec :

$$\sigma_{W^{-}} = \frac{1}{\frac{\phi_f}{\sigma_f} + \frac{1 - \phi_f}{\sigma_m}}$$
(1.2)

$$\sigma_{W^+} = \phi_f \sigma_f + (1 - \phi_f) \sigma_m \tag{1.3}$$

Ces deux bornes inférieure (1.2) et supérieure (1.3) de WIENER offrent un encadrement toujours valide du comportement effectif d'un matériau composite à microstructure hétérogène, souvent utile pour vérifier la validité d'un modèle. Toutefois, cet encadrement s'avère souvent trop large pour être suffisant à l'estimation des propriétés électriques effectives d'un composite hétérogène, étant donné que l'hypothèse d'un courant unidimensionnel n'est pas réaliste lorsque les valeurs des conductivités électriques des constituants sont très différentes et les renforts dispersés aléatoirement dans la matrice polymère isolante. Pour illustrer la limite de ces bornes, on peut citer l'exemple des matrices polymères chargées en graphite ou nanoparticules de carbones. Néanmoins, dans le cas des matériaux composites à renforts unidirectionnels, ces bornes s'avèrent adaptées pour l'estimation de la conductivité électrique longitudinale (équation (1.3)) d'un pli UD. En effet, ce modèle ne prend pas en compte le phénomène de percolation. Bornes de HASHIN et SHTRIKMAN : elles permettent de calculer les bornes inférieure et supérieure de la conductivité électrique effective d'un matériau composite. En supposant isotrope la répartition spatiale aléatoire des constituants, on construit des bornes plus resserrées que les bornes de WIENER. D'après un résultat bien connu de HASHIN et SHTRIK-MAN [51] , la conductivité électrique effective d'un matériau composite à deux phases (avec $\sigma_m \prec \sigma_f$) est encadrée par :

$$\sigma_{HS-} \preceq \sigma_{eff} \preceq \sigma_{HS+} \tag{1.4}$$

avec :

$$\sigma_{HS-} = \sigma_m + \frac{\phi_f}{\frac{1}{\sigma_f - \sigma_m} + \frac{1 - \phi_f}{d_r \cdot \sigma_m}}$$
(1.5)

$$\sigma_{HS+} = \sigma_f + \frac{1 - \phi_f}{\frac{1}{\sigma_m - \sigma_f} + \frac{\phi_f}{d_r \cdot \sigma_f}}$$
(1.6)

où d_r est un paramètre qui représente la dimension du système et définit la forme des inclusions (ou renforts). Par conséquent, si les inclusions ont une forme elliptique (2D) $d_r = 2$ et pour une forme sphérique (3D) $d_r = 3$.

Pour les matériaux composites UD, l'encadrement de HASHIN et SHTRIKMAN borne efficacement la conductivité électrique effective transverse de ces derniers. En revanche, l'encadrement de la conductivité électrique effective longitudinale est surestimé.

Modèles d'estimation des propriétés électriques effectives

Dans cette partie, quelques-uns des modèles d'estimation des propriétés électriques effectives [52, 53] d'un matériau composite sont présentés. D'autres peuvent être déduits en s'inspirant des travaux d'ESHELBY en élasticité linéaire [54] sur la résolution du problème de l'inclusion. Ces modèles estiment généralement la conductivité électrique des matériaux composites à matrice polymère chargée. De même, ils sont aussi utilisés pour l'estimation de la conductivité transverse effective des matériaux composites à renforts fibreux UD.

Modèle de NIELSEN : il utilise des équations similaires à celles utilisées pour estimer le module d'élasticité des matériaux composites, qu'il étend pour calculer des conductivités électriques et thermiques des matériaux à deux phases [55]. La conductivité électrique effective, est définie comme suit :

$$\sigma_{eff} = \sigma_m \left[\frac{1 + A \cdot B \cdot \phi_f}{1 - B \cdot \psi \cdot \phi_f} \right]$$
(1.7)

avec :

$$B = \frac{\sigma_f / \sigma_m - 1}{\sigma_f / \sigma_m - A} \tag{1.8}$$

$$\psi = 1 + \left(\frac{1 - \phi_{max}}{\phi_{max}^2}\right)\phi_f \tag{1.9}$$

où A est une constante qui dépend essentiellement de la forme des particules, de la manière dont elles sont dispersées et orientées par rapport à la direction du courant électrique. La Table 1 de la référence [55] récapitule quelques valeurs de *A* identifiées pour divers matériaux à deux phases, tandis que la constante *B* est un facteur qui tient compte de la conductivité électrique intrinsèque des deux phases du matériau. Le terme ψ peut être calculé en connaissant la fraction volumique maximum ϕ_{max} de conditionnement des renforts (particules ou dopants).

Toutefois, ce modèle de NIELSEN a été utilisé par BIGG et *al.* [33] pour prédire les conductivités thermique et électrique et les comparer à celles obtenues expérimentalement sur de l'aluminium polypropylène composite. Ils ont conclu que ce modèle prédit bien la conductivité thermique de ce dernier, contrairement à la conductivité électrique où ils jugent ce modèle invalide. Ils ont émis l'hypothèse que cela est dû sans doute aux différences des mécanismes de conduction électrique et thermique, vu que le mécanisme de conduction électrique se fait par flux d'électrons libres et nécessite un chemin continu (voir soussection 1.4.2.3), tandis que le mécanisme de conduction thermique se fait par les vibrations moléculaires et le mouvement des électrons libres [33]. De ce fait, le transfert d'énergie thermique peut se faire même en absence d'un trajet continu de renforts.

Modèle de McCullough : il dérive d'une relation généralisée [56] combinant divers mécanismes de transport (thermique, électrique, diélectrique, etc.), pouvant être déduites comme des cas particuliers de la relation générale. En prenant comme cas particulier le mécanisme de transport via la théorie de percolation (voir sous-section 1.4.2.3), McCullough prédit la conductivité électrique par la relation ci-dessous :

$$\sigma_{eff} = \phi_f \sigma_f + \phi_m \sigma_m - \left[\frac{\lambda_i \phi_f \phi_m \left(\sigma_f - \sigma_m \right)^2}{V_{fi} \phi_f + V_{mi} \sigma_m} \right]$$
(1.10)

où V_{fi} et V_{mi} sont définis comme :

$$V_{fi} = (1 - \lambda_i)\phi_f + \lambda_i\phi_m \tag{1.11}$$

$$V_{mi} = \lambda_i \phi_m + (1 - \lambda_i) \phi_m \tag{1.12}$$

où λ_i est un facteur de longueur de chaîne qui est fonction sur le rapport d'aspect des particules. Ainsi, BERGER et MCCULLOUGH [57] ont constaté que ce modèle dérivant de la relation généralisée présente une bonne corrélation avec les résultats expérimentaux obtenus avec un matériau composite en poudre polyester d'aluminium. Ce modèle correspondrait bien à l'estimation des propriétés électriques de matrices polymères chargées en graphite ou en nanotubes de carbone, etc.

Théorie des milieux effectifs généralisés : c'est un modèle proposé par MCLACHLAN et *al.* [58] plus connu sur le nom de la théorie du Milieu Effectif Généralisé (GEM). Ce modèle est une combinaison directe de la théorie des moyennes efficaces avec la théorie de la percolation. L'équation de GEM associe les aspects de percolation avec le modèle de BRUGGEMAN [59]. De ce fait, la conductivité électrique effective de l'ensemble des fractions de volume conducteur, y compris la région de transition conducteur-isolant autour du seuil de percolation sont décrits par :

$$(1 - \phi_f) \frac{\sigma_m^{1/t} - \sigma_{eff}^{1/t}}{\sigma_m^{1/t} + A\sigma_{eff}^{1/t}} + \phi_f \frac{\sigma_f^{1/t} - \sigma_{eff}^{1/t}}{\sigma_f^{1/t} + A\sigma_{eff}^{1/t}} = 0$$
(1.13)

où σ_f , σ_m , σ_{eff} sont, respectivitement, la conductivité des inclusions (fibres,par exemple), de la matrice et effective du matériau composite, ϕ_f est la fraction volumique des inclusions et t un exposant critique déterminé à partir des données expérimentales de manière générale, dépendant principalement de la dimension du système et non de la géométrie de la structure [58]. La constante A est décrite en termes de seuil de percolation, ϕ_c , et peut être liée à des facteurs de démagnétisation de la matrice (N_m) et des particules(N_p).

$$A = \frac{1 - \phi_c}{\phi_c} = 1 - \frac{N_m}{N_p}$$
(1.14)

Dans la même optique, TAYA et UEDA [60] ont proposé sur la théorie des milieux effectifs la formule ci-dessous de la conductivité électrique effective. Ils considèrent que, pour un matériau composite conducteur, le réseau d'origine constitué de conductances distribuées de façon aléatoire est remplacé par un réseau de symétrie semblable.

$$\sigma_{eff} = \sigma_m \left[1 + \frac{\phi_f \left(\sigma_f - \sigma_m\right) \left[\left(\sigma_f - \sigma_m\right) \left(S_{11} + S_{33}\right) + 2\sigma_m\right]}{2 \left(\sigma_f - \sigma_m\right)^2 \left(1 - \phi_m\right) S_{11} S_{33} + \sigma_m \left(\sigma_f - \sigma_m\right) \left(2 - \phi_m\right) \left(S_{11} - S_{33}\right)} \right]$$
(1.15)

Dans le cas des matériaux composites où la phase discontinue (les inclusions) dispersée se présente comme des sphères alors :

$$S_{11} = S_{22} = S_{33} = \frac{1}{3} \tag{1.16}$$

Pour les matériaux composites à fibres longues continues, on peut calculer les coefficients S_{11} , S_{22} et S_{33} en utilisant l'équation (1.17) ci-dessous :

$$S_{11} = \frac{ld^2}{2\left(l^2 - d^2\right)^{3/2}} \left[\frac{l}{d} \left(\frac{l^2}{d^2} - 1 \right)^{1/2} - \cosh^{-1} \left(\frac{l}{d} \right) \right], \quad S_{22} = S_{11}, \quad S_{33} = 1 - S_{22} \quad (1.17)$$

où *l* et *d* sont respectivement la longueur et le diamètre des fibres. Toutefois, contrairement au modèle de MCLACHLAN et *al*. [58], le modèle TAYA et UEDA [60] ne prend pas en compte le seuil de percolation et est insensible à l'évolution du ratio d'aspect des fibres.

Modèle de MAXWELL-GARNETT : ce modèle considère que les inclusions (ou renforts) sont sphériques isolées sans interactions et placées dans le matériau hôte. Dans le modèle de MAXWELL- GARNETT, l'estimation de conductivité électrique effective est incertaine pour les fractions volumiques d'inclusions supérieures à 50% [61]. En considérant que $\sigma_m < \sigma_f$, on obtient σ_{eff} par l'équation ci-dessous :

$$\sigma_{eff} = \sigma_m + \frac{\phi_f}{\frac{1}{\sigma_f - \sigma_m} + \frac{1 - \phi_f}{d_r \cdot \sigma_m}}$$
(1.18)

Modèle de BRUGGEMAN : dans ce modèle, l'hypothèse de l'existence du matériau hôte explicite n'est plus considérée [61], mais les inclusions sont considérées sphériques. Contrairement au modèle de MAXWELL-GARNETT, ce modèle assure un domaine de validité pour les fractions volumiques d'inclusions plus élevées, puisqu'il traite les deux phases de manière symétrique [62], et les inclusions peuvent être en interaction. On obtient σ_{eff} en résolvant l'équation (1.19).

$$\phi_f \cdot \frac{\sigma_f - \sigma_{eff}}{2\sigma_{eff} + \sigma_f} + (1 - \phi_f) \cdot \frac{\sigma_m - \sigma_{eff}}{2\sigma_{eff} + \sigma_m} = 0$$
(1.19)

1.4.2.2 Limites des modèles analytiques

Bien qu'ils soient performant pour l'estimation de la conductivité thermique λ ou de la perméabilité magnétique μ [63, 64, 65, 66], ces modèles analytiques présentent des limites sur l'estimation de la conductivité électrique de matériaux composites à microstructure hétérogène. En effet, les phénomènes thermiques et magnétiques peuvent être considérés comme des processus de diffusion qui implique un fluide uniforme passant par tous les sites du milieu traversé. Ils ne dépendent pas de la formation d'un chemin ou réseau de renfort continu. Ces modèles ne prennent pas en compte le phénomène de percolation statique qui conditionne la circulation d'un courant continu. En plus, lorsque la conductivité de la matrice polymère σ_m tend vers 0, la plupart de ces modèles n'ont aucune signification

physique.

1.4.2.3 Phénomène de percolation

La théorie de percolation est définie de façon générale par un processus physique qui décrit, pour un système quelconque, comment les renforts répartis aléatoirement ou régulièrement dans la matrice isolante sont interconnectés pour former un réseau conducteur (ou percolant) [67]. Elle décrit la transition d'un matériau composite d'un état isolant à un état conducteur de courant électrique pour un taux de renfort critique (ϕ_c) (ou seuil de percolation) dans un matériau. Cette valeur de taux (fraction volumique ou massique) critique est atteinte, dès lors qu'une connectivité suffisante entre les renforts permet la conduction du courant électrique, caractérisant ainsi un réseau percolant. La courbe de percolation présentée sur la FIGURE 1.12 illustre l'évolution de la conductivité électrique d'un matériau composite en fonction de la fraction volumique de renforts ϕ incorporés dans la matrice polymère.



FIGURE 1.12 : Courbe de percolation électrique : conductivité électrique en fonction de la fraction volumique ϕ

On distingue un grand nombre de modèles statistiques [68, 69], qui décrivent le phénomène percolation électrique. Ces modèles suivent une loi de la puissance (équation.(1.20)) dans laquelle intervient la dimensionnalité du milieu. Ils permettent de décrire les propriétés électriques du matériau composite au-delà du seuil de percolation (zone III).

$$\sigma = \sigma_o \left(\phi - \phi_c\right)^t \tag{1.20}$$

Où σ_o est la conductivité électrique des renforts, ϕ est la fraction volumique de renforts, ϕ_c la fraction volumique au seuil de percolation et *t* l'exposant critique après percolation décrivant la dimensionnalité du système.

Par ailleurs, un matériau composite étant constitué d'une matrice isolante et de renforts conducteurs, son comportement électrique ne peut plus être décrit avec un seul exposant critique, étant donné que, d'une part, pour des taux de renfort faible, ces derniers sont isolés dans la matrice. En plus, le nombre de contacts entre eux ne permet pas de créer un réseau conducteur de façon continue (zone I). D'autre part, dans la zone percolation (zone II), l'augmentation du taux de renfort accroît la probabilité de contacts entre les renforts. De même, d'autres mécanismes de conduction électrique dynamiques notamment par effet tunnel [70, 71, 72, 73, 74] et par sauts « Hopping » [72, 75] peuvent apparaître si les renforts sont séparés d'une distance de quelques nanomètres.

De ce fait, STRALEY [76, 77] a proposé une méthode équivalente régie par l'équation.(1.21) ci-dessous, qui prend en compte les différentes zones du comportement électrique du composite.

$$\begin{cases} \sigma_{eff} = \sigma_m \left(\phi_c - \phi\right)^{-s} & zone(I) \\ \sigma_{eff} = \sigma_c \left(\frac{\sigma_m}{\sigma_c}\right)^u & zone(II) \\ \sigma_{eff} = \sigma_c \left(\phi - \phi_c\right)^t & zone(III) \end{cases}$$
(1.21)

Où *s* est un exposant critique d'avant percolation qui dépend de la dimension (2D ou 3D) et *u* s'exprime sous la forme u=t/(t+s). Ces exposants et le seuil de percolation sont déterminés à partir des données expérimentales de manière générale.

Cette méthode est largement utilisée afin de mesurer la valeur du seuil de percolation. Toutefois, elle ne prend pas en compte la nature et la forme des renforts, la méthode de dispersion des renforts, etc. D'ailleurs, un certain nombre d'études sur le seuil de percolation des matériaux composites [78, 79] ont été publiées dans la littérature avec des données expérimentales diverses suivant les techniques de dispersion du renfort dans la matrice polymère isolante, le type et structure de renforts, la méthode de mesure expérimentale utilisée, etc. De ce fait, il est difficile de se prononcer sur le choix d'une méthode vu le grand nombre de paramètres qui entrent en jeu. Cependant, la communauté scientifique s'accorde globalement sur le fait que le facteur clé que contrôle le seuil de percolation est la technique de dispersion du renfort dans la matrice polymère, dispersion notamment conditionnée par la nature des renforts et par la viscosité de la matrice polymère.

1.4.2.4 Modèles numériques

Cette sous-section présente des outils numériques utilisés pour la modélisation numérique de microstructures hétérogènes de matériaux composites. Dans ces modèles le formalisme d'homogénéisation est le même que celui des modèles analytiques. Par ailleurs, la principale contrainte des modèles numériques est la génération d'une microstructure réaliste des composites. Ainsi, différentes méthodes ont été mises en avant dans la littérature pour générer des microstructures hétérogènes :

- \rightarrow la méthode basée sur le modèle RSA (Random Sequential Adsorption) ;
- $\rightarrow\,$ la méthode basée sur le modèle de la dynamique moléculaire ;
- \rightarrow la méthode basée sur l'imagerie (tomographie X, microscope électronique à balayage)

Une fois la microstructure numérique du matériau composite obtenue (cellule élementaire de VER), on impose à cette dernière des conditions aux limites et résoud les équations formulant les phénomènes physiques mis en jeu (électrocinétique, dans notre cas). Par ailleur, la taille du VER doit remplir les conditions du formalisme d'homogénéisation. Différentes méthodes comme les éléments finis, les volumes finis, les réseaux de résistances [80], etc., sont généralement utilisées dans la littérature pour calculer les propriétés physiques effectives de matériaux à microstructure hétérogène.

Méthode basée sur le modèle RSA

Elle consiste à répandre aléatoirement des renforts dans la matrice grâce au modèle RSA. Ce modèle RSA est déterminé par un algorithme qui positionne aléatoirement suivant une loi uniforme dans le VER les centres des inclusions de même taille les uns après les autres tout en respectant les conditions aux limites, jusqu'à l'obtention de la fraction volumique souhaitée. Les conditions limites à respecter dans cet algorithme sont :

→ la distance entre l'inclusion *i* et les inclusions déjà acceptées (j = 1, ..., i - 1) doit être supérieure ou égale à une distance d'exclusion *De*

$$\forall j \in [1 \dots i - 1] \parallel P_i - P_j \parallel \geq D_e$$

 \rightarrow si une inclusion i entrecroise une inclusion déjà placée, sa position est exclue du VER et retirée aléatoirement à nouveau.

Cependant, ce modèle ne permet pas d'atteindre des fractions volumiques élevées, à cause de sa limite de nombre d'inclusions qu'il peut distribuer dans un VER. La fraction volumique maximale de particules que l'on peut atteindre par cette méthode est d'environ 30% [81, 82]. Pour contourner cette limite, des travaux publiés dans la littérature proposent des modèles modifiés de RSA en vue d'atteindre des fractions volumiques plus élevées. À cet effet, SEGURADO et LLORCA [83] ont proposé un modèle modifié de RSA, afin d'atteindre une fraction volumique de l'ordre de 50%. Pour cela, ils ajoutent au modèle RSA une étape supplémentaire de dilatations et réarrangements qui permet d'augmenter la fraction volumique des inclusions en les dilatant progressivement et, si besoin, en les redistribuant localement de façon aléatoire tout en vérifiant les conditions aux limites. De même, KARI et *al.* [84] considèrent différentes tailles d'inclusions (à la place d'inclusions de même taille) et en les répartissant dans le VER de manière décroissante, pour atteindre une fraction volumique de l'ordre de 60% pour des inclusions sphériques.

Méthode basée sur le modèle de dynamique moléculaire

Cette méthode consiste à répandre aléatoirement des renforts dans la matrice de façon différente grâce au modèle de la dynamique moléculaire. Ce modèle est déduit d'un algorithme de simulation dans laquelle les équations de la dynamique newtonienne sont résolues pour un ensemble d'atomes qui sont considérés dans cette méthode comme des inclusions. Elle part du principe qu'à l'instant *t* égal à zéro toutes les inclusions sont générées et occupe une fraction volumique nulle. On attribue ensuite une position et une vitesse aléatoirement à chaque itération d'inclusion dans le VER, et on applique l'équation de la dynamique à l'ensemble des inclusions du VER jusqu'aux conditions d'équilibre (avec les conditions limites). Ce processus est reproduit jusqu'à ce que l'on atteigne la fraction volumique souhaitée. Les conditions d'équilibre pour chaque itération sont :

- \rightarrow pas de chevauchement entre les inclusions, car leur vitesse doit être mis à jour lors des collisions selon le principe de l'énergie cinétique;
- \rightarrow et les inclusions qui débordent sur une des bornes du VER, doivent rentrer par la borne opposée afin d'assurer les conditions aux limites de périodicité.

Ainsi, DONEV et *al.* [84] ont proposé un algorithme de dynamique moléculaire basé sur le modèle de LUBACHEVSKY et STILLINGER [85] et LUBACHEVSKY et *al.* [86] modifié pour générer des empilements aléatoires d'inclusions (ellipsoïdes, sphères et non-sphériques). Ils introduisent aussi la notion de « proche voisin » pour limiter le temps de vérification des collisions entre inclusions. Cela permet d'obtenir des fractions volumiques élevées de l'ordre de 60 à 74% avec des inclusions sphériques.

Ces deux méthodes (RSA et dynamique moléculaire) sont bien adaptées à la modélisation numérique des propriétés électriques effectives de matériaux composites à matrice polymères dopés avec des charges conductrices réparties aléatoirement dans la matrice. En revanche, dans le cas des matériaux composites à renfort unidirectionnel ou à architecture complexe, la modélisation est plus difficile. De ce fait, on définit un motif élémentaire caractéristique de la microstructure, puis on utilise la périodicité de ce dernier pour en déduire son tenseur de conductivité électrique effective du matériau composite [87, 88, 89]. Toutefois, il ne faut pas perdre l'idée que ces deux méthodes numériques présentées cidessus sont fondées sur des simplifications géométriques. Les microstructures générées sont souvent éloignées de la microstructure réelle du matériau. C'est pour cette raison, que des méthodes basées sur la reproductibilité de la structure microscopique des matériaux ont été proposées dans la littérature.

Méthode basée sur l'imagerie

Ces méthodes prédisent les propriétés effectives des matériaux composites à partir de coupes d'images microscopiques de la structure du matériau composite, obtenues par différentes techniques d'imagerie tels que la microscopique à balayage optique ou électronique, par tomographie aux rayons X, etc. Ces techniques permettent d'obtenir des images numériques bidimensionnelles ou tridimensionnelles qui décrivent la microstructure d'un matériau composite hétérogène. L'image obtenue est ensuite maillée après une opération de traitement d'image (détection de contours) pour le calcul numérique.

À cet effet, on trouve une importante littérature de travaux qui se basent sur cette méthode. CYR et *al.* [90, 91] ont proposé une approche de modélisation basée sur l'observation d'une image bidimensionnelle réelle de la microstructure de matériaux magnétiques composites doux pour prédire leur courbe d'aimantation effective (ou macroscopique). Par ailleurs, FAESSEL et *al.* [92] et LUX et *al.* [93] proposent aussi une autre approche basée sur des images tridimensionnelles issues de tomographie pour prédire les propriétés thermiques effectives de matériaux composites à fibres. Ces méthodes peuvent correspondre aussi bien à la modélisation numérique des propriétés effectives de matériaux composites polymères dopés avec des charges conductrices (ou renforts en forme de particules) réparties aléatoirement dans la phase continue (la matrice), que celui de matériaux composites à renforts fibreux longs.

Néanmoins, en dépit de la résolution et de la qualité élevée des images acquises, cette méthode reste coûteuse et peu accessible. La taille des échantillons que l'on peut traiter reste relativement faible. De ce fait, un débat se pose sur la représentativité du VER de la structure réelle du matériau composite à prendre en compte les différents niveaux d'hétérogénéité du composite (composite tissé, composite stratifié UD à résine chargée, par exemple) et le phénomène de percolation.

1.4.3 Conclusion et démarche de modélisation retenue

La variété des outils de modélisation électrique dédiée à la prédiction des propriétés électriques de matériaux composites est conséquente. Toutefois, si la plus part d'entre eux se montre très adéquate, aucun ne permet de prendre en compte l'ensemble des niveaux d'hétérogénéité et le phénomène de percolation des matériaux composites complexes en une seule opération. L'approche de modélisation que nous avons retenue pour prendre en compte la complexité de la structure de ces matériaux composites et le phénomène de percolation va s'appuyer sur une démarche de modélisation **multi-échelle**. Pour cela, on décomposera en différents niveaux la structure du composite, dont chacun représente une échelle différente. Pour coordonner ces niveaux d'hétérogénéité entre eux, on utilise une approche ascendante permettant de remonter de l'échelle microscopique (échelle de la fibre) à l'échelle macroscopique (échelle du composite). Le nombre d'échelles intermédiaires entre l'échelle microscopique et l'échelle macroscopique dépend de la complexité de la microstructure du composite. La FIGURE 1.13 illustre un exemple de cette démarche sur un matériau composite. Cette démarche de modélisation sera détaillée dans le chapitre 2.



FIGURE 1.13 : Différentes échelles d'homogénéisation d'un composite à microstructure complexe [94].

1.5 Caractérisation expérimentale des matériaux

La caractérisation de la conductivité électrique des matériaux classiques homogènes isotropes a fait l'objet de nombreuses études dans la littérature, dont les techniques de caractérisation ont été bien maitrisées depuis des années. Toutefois, lorsqu'on a affaire à des matériaux hétérogènes, leurs caractérisations électriques peuvent s'avérer très complexes, vu que la complexité de leur microstructure hétérogène nous amène à nous poser un certain nombre de questions, notamment sur la représentativité des éprouvettes représentant le matériau, la section de passage du courant, etc. Autant de questions qui nécessitent d'avoir en amont une perception sur la composition du matériau, la microstruture, l'architecture du renfort, les conductivités électriques intrinsèques de ses différents constituants, son procédé de fabrication etc., pour aborder la caractérisation électrique de ces matériaux. Par conséquent, cela nécessite l'usage de méthodes de caractérisation électrique adéquates à la morphologie de la microstructure et à l'architecture du renfort de ces composites. La FIGURE 1.6 illustre un exemple d'architecture du renfort et d'orientation des plis d'un matériau composite. La conductivité électrique de ce matériau composite est anisotrope et s'exprime sous forme tensorielle comme suit :

$$[\sigma] = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} & \sigma_{zy} & \sigma_{zz} \end{bmatrix}$$
(1.22)

où x, y et z représentent les trois directions d'un plan dans l'espace cartésien.

La caractérisation électrique de ce matériau consiste en la résolution d'un problème inverse en vue d'estimer sa conductivité électrique connaissant la réponse électrique du matériau par rapport à une contrainte électrique. De plus, si le matériau est orthotrope, i.e. qu'il possède trois plans de symétrie orthogonaux ce qui est généralement le cas pour ces matériaux composites, le tenseur de conductivité homogénéisé devient :

$$[\sigma] = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{bmatrix}$$
(1.23)

Ainsi, on trouve dans la littérature, dans le cas des matériaux conventionnels, plusieurs méthodes de mesure de la conductivité électrique [95, 96], que l'on peut classer en deux groupes :

 \rightarrow les méthodes de mesure sans contact, qui renvoient à une expérience où l'excitation et la mesure sont éloignées de l'éprouvette ;

 \rightarrow et les méthodes de mesure avec contact, qui lient des contacts entre le dispositif d'excitation, les capteurs de mesure et l'éprouvette.

1.5.1 Méthodes sans contact

primaire

Ces méthodes de mesure de la conductivité électrique sont basées sur le principe du phénomène des courants induits, idem à la méthode du Contrôle Non Destructif (CND) par des Courants de Foucault (CF). Elles reposent sur l'excitation d'un échantillon de plaque de matériaux conductrices d'électricité. Cette plaque est placée dans un champ magnétique d'excitation variable généré par un générateur d'excitation alimenté par un courant variable. Ce champ magnétique d'excitation va induire à son tour la circulation des CF de même fréquence que le courant variable d'alimentation à l'intérieur de l'échantillon sans en altérer les caractéristiques. Ces courants de Foucault créent un champ magnétique induit opposé au champ magnétique d'excitation (FIGURE 1.14). Le champ magnétique induit créé par les courants de Foucault est lié directement aux propriétés géométriques et électromagnétiques (conductivité électrique, perméabilité électrique et permittivité électrique) de l'échantillon d'une plaque de matériau conducteur.



(b) Des courant sont in dans le matériau

(c) Ces courants créent un champ secondaire

FIGURE 1.14 : Schéma de principe du CND par courants de Foucault [97].

Ainsi, à partir d'un récepteur on recueille la réponse des grandeurs globales mesurées (impédance, inductance, résistance, température, etc.) due à la présence de l'échantillon. On remonte ensuite aux propriétés électromagnétiques de l'échantillon du matériau, à l'aide d'outils d'analyse et de calcul la méthode inverse. À cet effet, on distingue différents types de récepteurs qui peuvent être classés en deux groupes [98] :

→ les capteurs inductifs, c'est-à-dire des bobines qui transforment le champ magnétique les traversant en une tension. Ils peuvent jouer une double fonction, notamment d'excitation et de mesure (réception); → et les capteurs magnétiques, qui se basent sur la variation de l'impédance ou de la résistance du capteur qui est proportionnel au champ magnétique dans lequel il baigne. Parmi ces capteurs, nous avons : les SQUID (Superconducting Quantum Interference Device), les sondes de Hall, les Fluxgates, les Magnéto-Résistances (MR), les Magnéto-Impédances (MI) [99, 100], etc.

À cela, on peut ajouter la mesure sans contact de la température de l'échantillon à l'aide d'une caméra thermique ou d'un capteur infrarouge sur le principe de la technique thermoinductive [101, 102]. De ce fait, une fois les grandeurs globales mesurées, l'estimation de la conductivité électrique consiste à établir un modèle numérique ou analytique du problème direct dont on compare le résultat à la mesure expérimentale de la grandeur globale considérée. Pour effectuer cette comparaison , on fait appel à des outils d'optimisation [103] qui vont faire tendre la conductivité électrique à identifier du modèle numérique ou analytique vers la grandeur globale cible expérimentale.

1.5.2 Méthodes avec contact

Elles sont basées principalement sur les méthodes volt-ampéremétriques qui sont très utilisées pour l'identification de la conductivité électrique des matériaux homogènes et isotropes.

1.5.2.1 Méthodes voltampère-métriques

Elles consistent à déduire la conductivité électrique d'un échantillon de matériau à partir de ses dimensions géométriques et de la mesure de résistance électrique. La résistance électrique est obtenue par la loi d'Ohm : U=RI, à partir d'un courant imposé aux bornes de l'échantillon et de la tension mesurée à ces bornes. On distingue deux principales méthodes : la méthode des deux points (ou des deux fils) et la méthode des quatre points (ou des quatre fils).

Méthode des deux points : cette technique de mesure de la résistance électrique de l'échantillon du matériau, comme on peut la distinguer sur la FIGURE 3.6, s'opère seulement avec deux contacts électriques sur l'échantillon. Son principe classique est d'injecter du courant continu (DC) à l'échantillon via ces deux contacts électriques et de mesurer la chute de tension à ces bornes à travers les mêmes contacts, quoique cette technique puisse introduire des erreurs de mesure sur la tension à mesurer V_{mes} liées aux chutes de tensions parasites dans les résistances parasites : résistances des fils de mesures et des contacts électriques (FIGURE 3.6).



FIGURE 1.15 : Méthode des deux points : (a) schéma de mesure et (b) les différentes résistances du circuit de mesure

$$V_{mes} = I \left(R_{contacts} + R_{echantillon} + R_{fils} \right)$$
(1.24)

$$V_{mes} = \underbrace{I \cdot R_{echantillon}}_{tension \ utile} + \underbrace{I \cdot (R_{contacts} + R_{fils})}_{tension \ parasite}$$
(1.25)

$$\sigma = \frac{1}{R_{echantillon}} \cdot \frac{L}{S} = \frac{1}{R_{echantillon}} \cdot \frac{L}{e \cdot l}$$
(1.26)

où σ ($S.m^{-1}$) est la conductivité électrique, $S = e \cdot l$ - la section de passage du courant, e l'épaisseur de l'échantillon, L distance entre les deux électrodes de mesure de la tension.

Du coup, elle devient intéressante dans le cas où les résistances parasites (des fils et des contacts électriques) sont négligeables devant la résistance de l'échantillon du matériau, notamment celui des matériaux à grande résistance électrique. En plus, pour réduire encore mieux l'influence de ces sources d'erreurs des résistances parasites, on peut aussi :

- \rightarrow prendre une longueur (*L*) très grande et une section (*S*) très faible pour garantir une résistance plus importante par rapport aux résistances parasites;
- \rightarrow réaliser des contacts électriques de très grande qualité sur les échantillons de matériau avec des matériaux très bons conducteurs, etc.

Dans le cas contraire où les résistances parasites ne sont pas négligeables devant la résistance de l'échantillon, une des solutions pour négliger ces résistances parasites est de faire une mesure à quatre points.

Méthode des quatre points : cette méthode, par rapport à la méthode des deux points, sépare le circuit injectant le courant et celui qui mesure la tension aux bornes de l'échantillon. Ainsi, quatre contacts électriques sur l'échantillon sont nécessaires pour la mesure : deux pour injecter le courant et deux autres pour mesurer la tension (FIGURE 3.7). Ce qui permet de réduire considérablement la tension des résistances parasites dans la mesure de la tension V_{mes} , vu que l'impédance du voltmètre qui mesure la tension aux bornes de l'échantillon est suffisamment grande devant la résistance ($R_{echantillon}$), pour que le courant *i* qui circule dans le voltmètre soit nul ou quasi-nul.



FIGURE 1.16 : Méthode des quatre points : (a) schéma de mesure et (b) les différentes résistances du circuit de mesure

$$V_{mes} = (I+i) \cdot R_{echantillon} + i \cdot (R_{contacts} + R_{fils})$$
(1.27)

$$V_{mes} = \underbrace{I \cdot R_{chantillon}}_{tension \ utile} + \underbrace{i \cdot (R_{echantillon} + R_{contacts} + R_{fils})}_{tension \ parasite \ negligeable}$$
(1.28)

$$\sigma = \frac{1}{R_{echantillon}} \cdot \frac{L'}{S} = \frac{1}{R_{echantillon}} \cdot \frac{L'}{e \cdot l}$$
(1.29)

où σ est la conductivité électrique, $S = e \cdot l$ - la section de passage du courant, e l'épaisseur de l'échantillon, L' distance entre les deux électrodes de mesure de la tension.

Toutefois, malgré la négligence des résistances parasites, cette méthode est loin d'être fiable pour donner des résultats de mesures quantifiés sans erreurs, notamment pour des échantillons à très faible résistance électrique, étant donné que l'injection du courant dans l'échantillon peut additionner des tensions thermoélectriques dans la mesure de tension aux bornes de l'échantillon. Ces tensions thermoélectriques sont dues aux différentes parties du circuit constitué de matériaux différents (échantillon, contacts électriques, fils, etc.). Ces matériaux mis en contact lorsqu'on injecte du courant à l'échantillon, subissent des gradients de température. Ces gradients de température induisent à leur tour des tensions parasites thermoélectriques (~ quelques μ V au mV) qui ne sont pas négligeables dans le cas des matériaux à très faible résistance. Pour s'affranchir de ces tensions thermoélectriques, deux solutions sont proposées dans la littérature : la méthode alternative (AC)

en utilisant un amplificateur à détection synchrone et la méthode d'inversion de courant continu (« DC current reversal method »).

Méthode alternative (AC) : elle consiste à injecter un courant alternatif $i(t) = I \sin(wt)$ de pulsation $w = 2\pi f$ (avec f la fréquence du signal) dans l'échantillon. Puis, on mesure la tension aux bornes de ce dernier entachée par un spectre en fréquence très variée (bruits de mesures, réponses des harmoniques 2w, 3w..., etc.) à l'aide d'un Amplificateur à Détection Synchrone (A.D.S) voir la FIGURE 1.17. Ainsi, après un traitement interne des différents signaux ($V_{entre}(t)$ et $u_{ref}(t)$ (proportionnelle et en phase avec le courant i(t))), l'A.D.S va enduire la composante purement résistive $X = (U_rV_1/2)cos(\Phi_1)$ où $\Phi_1 = 0$. Toutefois, dans la pratique Φ_1 n'est pas toujours nulle dans le cas de mesure de composante purement résitive, du fait des différentes capacités parasites qui peuvent être dues à la qualité imparfaite des contacts électriques. La valeur de Φ_1 mesurée nous informe à cette occasion sur la qualité des contacts électriques réalisés sur l'échantillon.



FIGURE 1.17 : Principe de mesure de la conductivité par la méthode alternative

Cependant, le principal inconvénient de cette méthode est le problème de synchronisation entre le générateur de la tension AC $u_{ref}(t)$ et le courant i(t) de la source AC pour qu'ils soient proportionnel, et en phase. En effet, dans la littérature, pour respecter ces conductions la solution proposée est d'utiliser une résistance shunt et un amplificateur [104] pour déduire la tension de référence $u_{ref}(t)$ (tension aux bornes du shunt après amplification) à partir du courant i(t) que l'on injecte dans l'échantillon. Cette solution a pour défaut d'introduire un déphasage indésirable entre le courant i(t) et la tension de référence $u_{ref}(t)$ induisant des erreurs dans la mesure du résultats. On obtient la résistance de l'échantillon par la relation :

$$R_{echantillon} = \frac{X}{I_{rms}} \tag{1.30}$$

Avec I_{rms} la valeur efficace du courant traversant l'échantillon qui est physiquement l'intensité d'un courant continu qui dissiperait la même énergie que le courant i(t) à travers l'échantillon sur une période.

Méthode d'inversion du courant ou « DC current reversal method » : elle consiste à injecter de manière consécutive deux courants continu DC de même valeur I mais de polarité opposée. Puis on mesure, d'une part une première tension V_{M+} (équation(1.31)) avec un courant de polarité positif aux bornes de l'échantillon, et d'autre part une seconde tension V_{M-} (équation(1.32)) avec le courant de polarité négative entachées toutes les deux de la tension thermoélectrique V_E (FIGURE 1.18).



FIGURE 1.18 : Principe de réduction de la tension thermoélectrique par la méthode inverse : a)Polarité positive et b) Polarité négative

En faisant la moyenne de la différence de ces deux tensions, on déduit la tension aux bornes de l'échantillon équation(1.33) que l'on souhaite mesurer. La composante des tensions thermoélectriques s'annule, étant donné qu'elle ne change pas de signe quelle que soit la polarité du courant injecté.

$$V_{M+} = V_E + I \cdot R \tag{1.31}$$

$$V_{M-} = V_E - I \cdot R \tag{1.32}$$

$$V_M = \frac{V_{M+} - V_{M-}}{2} = \frac{(V_E + I \cdot R) - (V_E - I \cdot R)}{2} = I \cdot R$$
(1.33)

On déduit la valeur de la résistance par l'équation(1.34) ci-dessous :

$$R = \frac{V_M}{I} \tag{1.34}$$

Toutefois, la valeur de la tension thermoélectrique évolue avec la température de quelques $\mu V \circ C^{-1}$ à $100\mu V \circ C^{-1}$ et donc avec le temps. Il est alors essentiel d'injecter des courants très faibles intensités aux échantillons pour ne pas les chauffer, tout en réalisant les mesures le plus rapidement possible. C'est cette technique d'injection de courant et de mesure

de la tension qui est retenue pour identifier la résistance électrique de nos échantillons afin de déduire la conductivité électrique.

La Spectroscopie Diélectrique Dynamique (SDD) : c'est une technique de mesure des propriétés diélectriques et de conduction électrique des matériaux polymères chargés ou non, par exemple, qui permet d'enregistrer les relaxations diélectriques et de les caractériser en fonction de la température et de la fréquence. Le principe de mesure de la spectroscopie diélectrique dynamique repose sur l'application d'une tension sinusoïdale superposée à la tension nominale et sur l'analyse de l'amplitude et du déphasage de la réponse en courant du matériau (FIGURE 1.19).



FIGURE 1.19 : Spectroscopie diélectrique dynamique : Principe de mesure

En effet, les matériaux diélectriques idéaux étant considérés comme parfaitement isolants, les seules pertes diélectriques sont dues à des phénomènes de relaxation. Cependant, dans les polymères chargés ou non et dans les composites, la conductivité électrique est loin d'être négligeable, du fait de la présence de charges libres. Dès lors, l'application d'un champ électrique macroscopique variable à l'échantillon composite engendre par conséquent un courant de conduction ainsi qu'un courant de déplacement. Par conséquent, aux pertes diélectriques s'ajoutent des pertes ohmiques qui sont associées à la partie réelle de conductivité complexe σ' (équation (1.35)).

$$\sigma' = \sigma(0) + \sigma(w) = \sigma_{DC} + \sigma_{AC} \tag{1.35}$$

où σ_{DC} (indépendante de la fréquence) et σ_{AC} représentent les conductivités électriques associées à un courant de conduction continu (DC), obtenu à fréquence nulle, et à un courant de déplacement alternatif (AC), respectivement. C'est une technique de mesure très utilisée pour étudier la percolation dynamique, les mécanismes de relaxation diélectrique, le vieillissement accéléré des polymères chargés ou non (isolants) à partir de la mesure de la conductivité et de la permittivité en fonction de la température et de la fréquence.

Remarque : La mesure de la conductivité électrique des échantillons de matériaux composites peut aussi être entreprise avec d'autres méthodes, qui ne seront pas abordées dans le cadre de cette étude. Il s'agit des méthodes de mesure de conductivité hyperfréquence, très adaptées pour l'identification de la conductivité électrique surfacique [96, 105], etc.

1.5.3 Bilan sur la caractérisation expérimentale

Le choix du banc d'essai expérimental va dépendre de la morphologie et de l'architecture des matériaux composites à caractériser de façon à lever certains verrous à l'identification de leur conductivité électrique, tout en réduisant au maximum les sources d'erreurs. Dans le chapitre 3 la nature et la structure des éprouvettes seront détaillés ainsi que la méthode de caractérisation associée.

1.6 Conclusion

Cette étude bibliographique a permis d'examiner brièvement les caractéristiques physiques et géométriques principales, ainsi que le mécanisme de conduction électrique des matériaux composites. Nous retiendrons à cet effet que les matériaux composites à structure complexe ont un caractère fortement anisotrope par rapport à leurs propriétés physiques (électriques, etc.). Cette étude a permis aussi de mettre en évidence les différents outils de caractérisation électrique et modèles développés dans la littérature ainsi que leurs hypothèses pour décrire au mieux le comportement électrique de ces matériaux composites. Les modèles vont nous permettre de prédire la conductivité électrique effective à partir des propriétés intrinsèques des constituants, de la morphologie de la microstructure, de l'architecture du matériau, etc. Ils donnent des résultats satisfaisants, dans le cas de la conductivité électrique longitudinale des composites à renforts UD. Or dans le cas de la conductivité électrique transversale, ces modèles ont été mis en défaut du fait que le mécanisme de conduction électrique (percolation) dans cette direction n'est pas pris compte. L'objectif suivant va consister à développer et à mettre en place une méthode de modélisation et de détermination expérimentale du tenseur de conductivité électrique de ces matériaux composites en tenant compte de leur complexité (architecture, phénomène de percolation, du facteur d'échelle, etc.). Nous décidons pour cela de partir, d'une homogénéisation multi-échelle, tenant compte de la percolation en statique, pour prédire le comportement électrique des matériaux composites à renforts UD. Cette étude fait l'objet du chapitre suivant.

2

MODÉLISATION ÉLECTRIQUE DES MATÉRIAUX COMPOSITES STRATIFIÉS À RENFORT UNIDIRECTIONNEL

Sommaire

2.1	Introduction		61
2.2	Méthode d'homogénéisation avec prise en compte de la percolation .		61
	2.2.1	Décomposition géométrique d'un stratifié UD	62
	2.2.2	Transition d'échelles micro-meso	63
2.3	Applic	ation aux composites UD à fibres parallèles	69
	2.3.1	Génération de la géométrie d'une cellule représentative	69
	2.3.2	Résolution numérique et résultats	72
2.4	Applic	ation aux composites UD à fibres ondulées	75
	2.4.1	Génération de la géométrie du VER	75
	2.4.2	Méthode de résolution numérique	76
	2.4.3	Résultats de modélisation et discussions	82
	2.4.4	Validation expérimentale	87
2.5	5 Conclusion		

2.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de présenter la démarche d'homogénéisation **multi-échelle** retenue et mise en place pour la prédiction du tenseur de conductivité électrique effectif des matériaux composites à renfort UniDirectionnel (UD) en tenant compte des phénomènes de percolation. À cet effet, nous avons décomposé en différents niveaux d'hétérogénéité l'architecture de ces composites, chacun représentant une échelle significative. À travers des homogénéisations successives entre les différentes échelles de ces composites, qui prennent en compte l'ensemble de ces niveaux d'hétérogénéité et la percolation, nous déduisons le tenseur de conductivité électrique effectif de ces derniers. Les résultats numériques obtenus des différentes homogénéisations sont comparés à ceux des modèles analytiques du chapitre 1 (section1.4), puis validés par des résultats expérimentaux sur des cas concrets de matériaux composites.

2.2 Méthode d'homogénéisation avec prise en compte de la percolation

Dans cette section, nous présentons une méthode d'homogénéisation multi-échelle du comportement électrique d'un matériau composite unidirectionnel (UD), tenant compte de la percolation. Ces composites unidirectionnels sont constitués d'un ensemble de fibres longues possédant un diamètre qui varie entre 3 et 15 μ m. Ces fibres longues sont réparties aléatoirement dans une résine polymère et orientées dans une même direction pour constituer une pièce de composante d'avion en matériau composite UD par exemple, de taille comprise entre quelques dizaines de centimètres à quelques dizaines de mètres. Le facteur d'échelle important entre la taille des fibres et celle de la structure UD nous oblige à prendre en compte la description de sa microstructure pour étudier son comportement électrique global. De ce fait, le comportement électrique de ces matériaux composites dépend fortement de celui des fibres, de la résine, des contacts entre fibres voisines, etc. La prise en compte du phénomène de percolation se produisant aux différents niveaux d'hétérogénéités de ces composites exige une description de ces niveaux. Toutefois, ce phénomène de percolation étant local, la simulation par éléments finis nécessite l'utilisation de maillages extrêmement fins, pour pouvoir représenter les différentes niveaux d'hétérogénéité du composite. Par conséquent, pour mailler toute une pièce macroscopique avec une finesse microscopique par la méthode des éléments finis, cela nécessiterait un système d'équations avec un nombre d'inconnues prohibitif avec des ressources et un temps de calcul considérable. La prise en compte des détails microscopiques à l'échelle de la structure UD du composite n'est donc pas envisageable avec la capacité de calcul des ordinateurs actuels. Par ailleurs, on trouve dans la littérature de nombreux travaux d'homogénisation [106, 107, 88, 108], basés sur un VER périodique de la microstructure du composite. En revanche, ces modèles ne prennent pas en compte la percolation électrique.

Ainsi, il est possible de contourner les contraintes sus-citées en utilisant les informations sur la distribution statistique de la microstructure hétérogène de ces matériaux composites à renfort UD. Pour cela, une méthode d'homogénéisation multi-échelle est utilisée. Cette méthode est basée, d'une part, sur une décomposition géométrique en plusieurs échelles du composite stratifié UD, et d'autre part, sur des transitions d'échelles ascendantes.

2.2.1 Décomposition géométrique d'un stratifié UD

L'analyse du comportement physique d'une structure de matériau composite UD avec des considérations trop locales est impossible avec les moyens de calculs actuels car cela impliquerait un nombre trop important d'inconnues. Pour contourner cette contrainte, le matériau composite réel est remplacé par un matériau homogène ayant le même comportement global que le matériau composite réel. De ce fait, une décomposition géométrique du matériau en différentes échelles est fondamental afin de trouver le meilleur compromis entre ces deux aspects : local et global. Ces matériaux composites à renforts UD peuvent être observés à trois échelles différentes : microscopique, mésoscopique et macroscopique.



FIGURE 2.1 : Décomposition des composites à renforts UD en différentes échelles d'étude.

L'échelle microscopique (micro) : elle se réfère à l'échelle d'une fibre $\approx 10 \ \mu m$ (FI-GURE 2.3 (c)). Cette échelle est généralement utilisée sur des volumes élémentaires représentatifs (VER) afin de simuler leur comportement physique équivalent puisqu'elle rend compte du contact entre fibres et leur distribution dans la matrice.

L'échelle macroscopique (macro) : elle correspond à l'échelle de la pièce de composite stratifiée de l'ordre du millimètre au mètre(FIGURE 2.3 (a)). L'empilement des plis de renforts UD est vu comme un matériau homogène équivalent. Les propriétés physiques à cette

échelle ne sont pas évidentes à mesurer car elles dépendent de phénomènes physiques complexes et difficiles à observer.

L'échelle mésoscopique (meso) : elle est l'échelle intermédiaire entre les deux échelles précédentes, associée à la partie du matériau composite qui est observable à une échelle millimétrique en particulier les plis (FIGURE 2.3 (b)). Elle a l'avantage de prédire les propriétés physiques à la fois globales et locaux des plis à renforts UD, considérés comme un milieu homogène. Elle est en général l'échelle de travail la plus utilisée pour la modélisation et l'analyse du comportement physique des plis à renforts UD.

Cette nature multi-échelle complexifie l'analyse et l'estimation de leurs propriétés physiques. C'est pourquoi l'usage du formalisme d'homogénéisation est nécessaire afin de prendre en compte cette complexité. De ce fait, connaissant les caractéristiques des éléments constitutifs (fibre et matrice) ainsi que l'organisation du matériau composite aux différentes échelles, il est possible de prédire le comportement électrique à partir de diffèrentes transitions d'échelles. D'une part, une première transition entre les échelles microscopique et mésoscopique est effectuée afin de prédire le comportement effectif du pli à renforts UD. D'autre part, une seconde transition entre les échelles mésoscopique et macroscopique permet d'aboutir au comportement global du matériau composite. Par ailleurs si les plis d'un matériau composite stratifié sont équilibrés et supposés sans désorientation relative, alors les propriétés électriques effectives du composite stratifié sont identiques à celle du pli. En revanche si ces conditions ne sont pas respectées, le comportement électrique du pli est different de celui du composite stratifié. Par conséquent, si l'on connait le plan de drapage (orientation relative entre les différents plis) du matériau composite stratifié, le tenseur de conductivité électrique effectif peut être déduit d'une manière analytique [109] ou numérique en utilisant des éléments coques anisotrope multicouches [110, 111, 112], des éléments de Wihtney dégénérés multicouches [113, 114, 115]. Dans ce chapitre, c'est la transition entre l'échelle microscopique et l'échelle mésoscopique qui va faire l'objet d'étude, tandis que la transition entre les échelles mésoscopique et macroscopique sera discutée au chapitre 4.

2.2.2 Transition d'échelles micro-meso

Les observations microscopiques au MEB de la microstructure 2D (FIGURE 2.2) de ces composites ont illustré leur nature très complexe liée à la distribution aléatoire des fibres, au facteur d'échelle, l'hétérogénéité, etc. Ces caractéristiques géométriques rendent difficile la modélisation du comportement de ces composites. Pour cerner cette complexité, le matériau composite est découpé en *n* VER réguliers comme l'illustre la FIGURE 2.3, comportant plusieurs hétérogénéités aléatoires pour avoir une bonne représentation statistique. De ce fait, la construction géométrique de la cellule élémentaire doit, bien évidemment, tenir compte des complexités sus-citées. Par ailleurs, la taille du VER qui permet d'obtenir des comportements statistiquement identiques ne doit pas être trop grande pour ne pas entraîner une complexité numérique trop importante.



FIGURE 2.2 : Coupe transverse micrographique d'un matériau composite à renforts UD : mise en évidence de la variabilité de la microstructure.



Problème de n cellules de VER

FIGURE 2.3 : Décomposition géométrique d'un pli UD de matériau composite en n cellules de VER.

De même, les structures géométriques des différentes VER (ou cellules) étant très hétérogènes et aléatoires d'un VER à un autre, le champ cellulaire n'est pas périodique et sa valeur moyenne n'est pas nulle au sein d'un VER (FIGURE 2.4). Dès lors, en effectuant une analyse de la transformée de FOURIER spatiale du champ réel sur un VER, en plus des raies du champ global et des hétérogénéités, une raie à fréquence nulle apparaît dont la composante continue varie par rapport à la structure des VER (FIGURE 2.5). Ces composantes (continue et hétérogénéités) n'étant pas filtrées, une dispersion importante sur la valeur du champ homogénéisé va être observée.



FIGURE 2.4 : Composante fluctuante du champ



FIGURE 2.5 : Analyse de la transformer de Fourier spatiale sur une cellule élémentaire (VER)

Ainsi, l'usage de la méthode d'homogénéisation va consister à filtrer les composantes des hétérogénéités de la composante cellulaire pour ne garder que ses composantes globales et continues du champ de chaque cellule (FIGURE 2.5). Puis, à l'échelle des composantes globale et continue une opération de moyenne est effectuée pour obtenir un intervalle de confiance (FIGURE 2.6) suffisant sur les propriétés globales obtenues par rapport à une loi

de distribution en particulier la loi de STUDENT. De ce fait, pour obtenir cet intervalle de confiance, il faut réaliser un nombre *P* de résolutions cellulaires pour une taille de VER optimale.



FIGURE 2.6 : Champ homogénéisé avec intervalle de confiance

Le choix du paramètre *P* (nombre de tirages) dépend de la précision recherchée pour l'intervalle de confiance. En contre-partie plus *P* est grand plus le temps de calcul est important. Il faudra donc trouver un juste équilibre entre précision et temps de calcul. À titre d'exemple, la FIGURE 2.7 illustre la dépendance de la précision de l'intervalle de confiance au nombre de tirage *P*.



FIGURE 2.7 : Illustration de l'influence du nombre de tirage sur l'intervalle de confiance à 90% de la loi de distribution de Student

Ainsi, pour une taille de VER définie, on effectue un nombre P de tirages de VER ($P \le n$) avec une forte probabilité de pouvoir reconstituer le matériau initial. Par ailleurs, pour un problème de taille *N* (*N* étant l'image du nombre d'inconnues du système global), la complexité du calcul de champ est sommairement proportionnelle à N^3 . Si le problème est divisé en *n* sous-domaines, la taille de chaque sous-domaine est alors de *N*/*n*, la complexité devient alors de l'ordre de ($P.(N/n)^3$). La complexité est divisée par n^2 dans le cas le plus défavorable où le nombre de tirages *P* est égal à *n* (le nombre total de VER).



FIGURE 2.8 : Illustration de l'influence de la taille des VER sur la représentativité de l'ensemble du matériau

Toutefois, on ne peut pas choisir *n* très grand sinon les VER seront petits et ils ne pourront plus être représentatifs de l'ensemble du matériau. La taille du VER optimale dans laquelle les propriétés physiques ont des variations négligeables pour les différentes distributions aléatoires de fibres dans la résine polymère [8, 116] doit garder un compromis entre la complexité numérique acceptable et la représentativité du matériau global (FIGURE 2.8). Pour cela, nous proposons un algorithme de résolution itératif sur l'estimation des propriétés physiques effectives qui augmente la taille du VER tant que la limite de confiance n'est pas satisfaisante, comme l'illustre la FIGURE 2.9. Dans le cadre de notre étude, il faut alors réaliser *P* générations de VER et appliquer *P* fois la méthode d'homogénéisation (filtrage spatial). Cette dernière opération est réalisée par un essai volt-ampèrimétrique afin de prédire leur propriété électrique effective. Pour calculer l'intervalle de confiance, nous avons utilisé la loi de distribution de STUDENT bien adaptée à notre besoin. Cet intervalle confiance est donné par :

$$\left[\overline{x} - t_{1-\alpha/2}^{n-1}\sqrt{\frac{S}{n}}, \overline{x} + t_{1-\alpha/2}^{n-1}\sqrt{\frac{S}{n}}\right]$$
(2.1)

avec :

$$\overline{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} x_i$$
, l'estimateur de l'espérance (2.2)

$$S = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^{n} (x_i - \overline{x})^2$$
, l'estimateur non biaisé de la variance (2.3)

et t_{γ}^k est la quantile d'ordre γ de la loi de Student à k degrés de liberté.



FIGURE 2.9 : Algorithme de résolution itératif sur l'estimation des propriétés physiques effectives

2.3 Application aux composites UD à fibres parallèles

2.3.1 Génération de la géométrie d'une cellule représentative

Il s'agit dans cette partie de construire une cellule (VER) avec une distribution aléatoire de fibres dans son volume. La FIGURE 2.2 d'une coupe micrographique transverse au microscope électronique à balayage (MEB) d'un composite à renforts UD, illustre une importante variabilité structurale en raison de la distribution aléatoire des fibres dans la matrice. Dès lors la principale contrainte dans cette sous-section à laquelle nous avons été confrontés, a été la génération d'une microscrotructure proche de celle de la réalité. On suppose que les fibres reparties aléatoirement dans le volume de la cellule de VER sont toutes parallèles. De ce fait, la génération de la géométrie d'une cellule de VER peut être ramenée à celle d'une cellule 2D. Pour prendre en compte la variabilité de la microstructure de ces composites, nous faisons appel à la méthode « Bubble Mesh » [2, 117] inspirée de la dynamique moléculaire dans la procédure de génération de la géométrie de la cellule de VER. Cette méthode permet de prendre en compte la modélisation du fluide (suspensions de fibres, forces d'interactions entre fibres, mouvement, ...) qui peuvent être élasto-visco-plastiques, dont les paramètres seront déterminés à l'aide de la description cinématique locale (tenseurs gradients de vitesse, de déformation) induite par l'écoulement de la matrice polymère et la pression lors du procédé de la mise en œuvre. A cet effet, nous considérons le matériau granulaire comme un ensemble de fibres (en 2D) qui se déplacent indépendamment les unes par rapport aux autres selon les lois déterministes de la mécanique newtonienne dans la cellule de VER du composite. Le processus se décline en quatre étapes établies comme suit :

- Initialisation des positions et des vitesses de chaque fibre : nous partons d'une cellule représentative de la microstructure du composite, dans laquelle nous plaçons des fibres aléatoirement jusqu'à l'obtention d'une fraction volumique de fibres imposée, sans se soucier du chevauchement éventuel entre les fibres. Les vitesses initiales sont considérées comme nulles.
- 2. Détection et résolution de contact : le but est de chercher si une fibre est en chevauchement avec une autre fibre au temps *t*. Si oui, on applique une force de répulsion afin d'annuler le chevauchement mais pas le contact électrique. Ainsi chaque fibre subit et applique une force sur les autres fibres en chevauchement avec elle. Cette force dépend de la distance qui sépare les centres de deux fibres de position distincte.
- 3. **Intégration des équations du mouvement :** elle consiste à appliquer à l'instant *t* le principe fondamental de la dynamique pour les forces, puis à intégrer les équations

par rapport au temps, pour déterminer la position de chaque fibre à l'instant $t + \triangle t$;

$$\sum \overrightarrow{forces} = m \overrightarrow{a}$$
(2.4)



FIGURE 2.10 : Profil de force de répulsion en fonction de distance r entre deux centres de fibres

La FIGURE 2.10 montre le profile de force retenu permettant d'avoir un chevauchement adapté au matériau composite.

Calcul des nouvelles positions de chaque fibre : cette étape permet la mise à jour des positions de chaque fibre au temps t + △t. Puis, retour à l'étape 2, si le point d'équilibre où toutes les fibres ne sont plus en chevauchement entre elles n'est pas atteint.



FIGURE 2.11 : Quelques étapes de la génération d'une cellule représentative du composite

La FIGURE 2.11 illustre quelques étapes de génération d'une cellule représentative de la microstructure 2D d'un matériau composite UD.

Remarque : si on considère les centres de deux fibres confondues, la force appliquée (répulsive) est très grande. Puis, celle-ci décroît au fur et à mesure que les deux fibres s'éloignent, puis s'annule de manière à garder le contact électrique. De plus, pour les fibres en contact avec les bords, les forces qui leur sont appliquées sont annulées dans la direction qui pousserait ces fibres vers l'extérieur de la cellule représentative.

Le programme que nous avons développé sous MATLAB[®], permet d'obtenir rapidement un modèle géométrique représentatif d'une microstructure 2D réaliste. Comme l'illustre la FI-GURE 2.13 . Toutefois, la taille du VER est un paramètre important pour l'homogénéisation **multi-échelle** du composite, vu qu'elle doit contenir un nombre de fibres suffisamment important pour avoir une bonne représentation statistique du comportement électrique de tout le composite. Par ailleurs, le VER ne doit pas être de taille trop importante pour pouvoir garder une finesse de modélisation et ne pas entraîner une complexité numérique inutile sur les simulations à l'échelle microscopique. De plus, pour tenir compte du procédé de fabrication de matériaux composites, on applique un certain nombre de contraintes pour favoriser la dispersion des inclusions dans la matrice. Parmi ces contraintes, on a l'altération du facteur de forme des fibres qui est provoquée par la force de pression que l'on modélise par un paramètre de chevauchement (en anglais « overlap ») comme l'illustre la FIGURE 2.12. Ce paramètre de chevauchement ne doit pas être trop important pour qu'elle garde une certaine signification physique dans le modèle.



FIGURE 2.12 : Modélisation numérique du paramètre de chevauchement dans la microstructure 2D d'une cellule de VER

2.3.2 Résolution numérique et résultats

Pour chacune des cellules (VER) la phase d'homogénéisation est obtenue par une simulation éléments finis électrocinétique (FIGURE 2.13) afin de calculer la conductivité électrique transverse effective. Une formulation en potentiel électrique V est utilisée avec l'imposition d'une source de courant. Le problème à résoudre est alors donné par :

$$\begin{cases} \operatorname{div}\left([\sigma] \, \overrightarrow{\operatorname{grad}} V\right) = 0 & (\Omega) \\ [\sigma] \, \frac{\operatorname{dV}}{\operatorname{dn}} = \pm J_s & (\Gamma_1) \\ [\sigma] \, \frac{\operatorname{dV}}{\operatorname{dn}} = 0 & (\Gamma_2) \end{cases}$$

$$(2.5)$$



FIGURE 2.13 : Schéma de la microstructure 2D représentative d'une coupe transverse d'un composite à renforts UD générée sur MATLAB[®] avec les conditions limites (en blanc : fibres et en noir : la matrice polymère).

La conductivité électrique effective homogénéisée est alors donnée par :

$$\sigma_{eff} = \frac{L_{VER} \times I_{source}}{S_{VER} \left(max(V) - min(V) \right)}$$
(2.6)

La recherche de la taille minimale de la cellule représentative est effectuée en réalisant une série de calculs de conductivité électrique, exécutée consécutivement sur des tailles de VER croissantes. Pour chaque taille considérée, l'opération de calcul de conductivité électrique est répétée plusieurs fois afin de prendre en compte la variabilité de la microstructure 2D.
L'évolution des résultats en fonction des différentes dimensions explorées doit démontrer une convergence des conductivités dès que la taille devient suffisamment représentative. Nous considérons alors à ce niveau que la taille du VER est trouvée. Dans cette recherche de la taille optimale de VER, les fluctuations locales de la fraction surfacique et des diamètres des fibres des microstructures sont négligées, vu qu'il s'agit de paramètres que nous contrôlons avec précision via notre programme de génération de microstructures 2D développé sous MATLAB[®]. Les fibres de carbone considérées dans notre étude ont un diamètre constant égale à 7 μ m et une résistivité électrique intrinsèque égale à 1,6 ×10⁻⁵ Ω m. Le code pourrait être étendu à une loi de distribution de rayon de fibres en fonction de leur contrainte d'élaboration. Ainsi pour une dimension de VER donnée, 100 tirages par fraction volumique de fibres du VER sont effectués afin de calculer le nuage de points de la conductivité électrique effective et d'estimer la bande de percolation, comme le montre la figure FIGURE 2.14. On définit une probabilité de percolation, comme le nombre de simulations pour lesquelles le VER est conducteur par rapport au nombre total de simulations.



FIGURE 2.14 : Nuage de points de la conductivité électrique en fonction de la fraction volumique de fibre

La FIGURE 2.15 illustre la probabilité de conduction électrique sur différentes tailles de VER en fonction de la fraction volumique des fibres. Nous constatons que la bande de percolation diminue avec l'augmentation de la taille du VER. Cette observation démontre que la conductivité électrique dépend aussi bien de la fraction volumique que de la distribution aléatoire des fibres dans la microstructure du matériau composite. Il suffit d'une formation de réseaux de contacts continus entre les fibres pour que le matériau devienne conducteur électrique. Cependant, le seuil de percolation des différentes tailles de VER n'est pas logique par rapport aux différents résultats expérimentaux où les seuils de percolation



FIGURE 2.15 : Effet de la taille du VER sur la probabilité de percolation

dans ces matériaux composites ($\sim 40\%$) sont plus bas que ceux que nous donne le modèle ($\sim 70\%$). De ce fait, on peut conclure que notre modèle d'estimation de la conductivité électrique effective en considérant les composites UD à fibres paralléles sous-estime le phènomène réel de percolation. En effet, contrairement à l'hypothèse fait sur les composites UD à fibres parallèles dans le volume du VER, les fibres sont en réalité ondulées [118] et augmentent ainsi la probabilité de contact entre les fibres (FIGURE 2.16).



FIGURE 2.16 : Mesure de la période d'ondulation des fibres d'un composite UD [118]

Cela peut donc expliquer cette différence de seuil de percolation du modèle par rapport aux résultats expérimentaux . De même, le phénomène de percolation est un mécanisme tridimensionnel dans le cas des matériaux composites à renforts UD. Par conséquent, la méthode d'homogénéisation va être étendue aux matériaux composites UD à fibres ondulées afin de prendre en compte des contraintes sus-citées. Cette étude fait l'objet de la section suivante.

2.4 Application aux composites UD à fibres ondulées

2.4.1 Génération de la géométrie du VER

Dans cette sous-section, notre but est d'obtenir la géométrie 3D représentative de la disposition des fibres dans une architecture de renforts unidirectionnels (UD) en fibres de carbones d'un composite. Par ailleurs, comme dans les composites à renforts UD les fibres ne sont pas parfaitement parallèles mais ondulées, elles peuvent entrer en contact, et des ponts conducteurs peuvent ainsi être créés permettant le passage du courant d'une fibre à une autre. Les travaux effectués par A. GILLET et *al* [118] dans ce sens ont montré l'existence de contacts aléatoires entre fibres avec une distance moyenne entre deux contacts de l'ordre de $320\mu m$. En outre, les fibres ondulent autour d'un axe central mais avec un angle de courbure aléatoire. À cet effet, pour prendre en compte ces aspects, la cellule de VER du composite est découpée en plusieurs couches dans le sens d'orientation des fibres (FIGURE 2.17) qui seront empilées pour constituer la géométrie 3D du matériau virtuel représentant le VER, comme l'illustre la FIGURE 2.18.



FIGURE 2.17 : Découpage d'un VER de matériau composite à renforts UD en couches : (a) VER d'un composite UD à fibres ondulées et (b) coupe transverse (couche)



FIGURE 2.18 : Reconstruction du VER de composite à renforts UD à partir de l'empilement des couches

Ainsi, pour modéliser cette distribution aléatoire des fibres et des contacts entre fibres, et de leurs ondulations, les fibres sont placées aléatoirement dans la section de chaque couche selon le processus de la dynamique moléculaire développé à la sous-section 2.3.1. Toutefois, la position du centre d'une fibre dans la couche (n + 1) va dépendre du placement du centre de cette fibre dans la couche n, avec un chevauchement réaliste de manière à pouvoir prendre en compte les contacts entre fibres et leurs ondulations. Dans la suite de notre étude, nous travaillerons avec des fibres de la famille « HTA40 3K » dont les caractéristiques géométrique et physique sont définies dans l'annexe

2.4.2 Méthode de résolution numérique

De part la nature muti-échelle, le placement aléatoire et l'ondulation des fibres dans le matériaux composites à renforts UD, il est laborieux et onéreux de résoudre le problème électrocinétique de la cellule de VER tridimensionnelle par la méthode des éléments finis. En effet, le phénomène de percolation étant local, l'usage de la méthode des éléments finis nécessiterait un maillage extrêmement fin pour prendre en compte les différents niveaux d'hétérogénéités ainsi que les phénomènes physiques mise en jeu. Pour éviter ces contraintes, la résolution du problème électrocinétique du VER est faite par la méthode de réseau de résistances électriques équivalentes.

2.4.2.1 Description de l'approche numérique de résolution du modèle

Pour la résolution numérique, afin d'obtenir le tenseur de conductivité électrique du VER 3D, le processus suivant est appliqué :

- Génération d'une géométrie 3D du VER qui prend en compte le caractère aléatoire de la position des contacts électriques ;
- Détermination d'un réseau d'impédance équivalent grâce la géométrie générée ;
- Détermination du tenseur à l'aide d'une simulation volt-ampèremétrique, en utilisant la méthode de réseau de résistances tridimensionnel.

Par ailleurs, comme les fibres sont ondulées, les fibres des différentes couches sont reliées entre elles par une résistance R_f et les fibres en contact au sein d'une même couche sont reliées par une résistance de contact R_c pour constituer un réseau d'impédances équivalent 3D.

$$R_f = \rho_f \cdot \frac{L_{c-c}}{\pi \cdot r_f^2} \tag{2.7}$$

où ρ_f est la résistivité électrique de la fibre de carbone, r_f le rayon de la fibre et L_{c-c} la longueur de la fibre entre deux couches. Comme l'angle d'inclinaison de la fibre entre deux couches est très faible, L_{c-c} sera prise égale à la distance entre deux couches.

Le comportement électrique d'un tel réseau peut être décrit par des équations du premier ordre différentielles formulées en utilisant une méthode de la loi des nœuds de Kirchhoff. De ce fait, la tension à chaque nœud k de la couche i sur un réseau multi-couches peut s'exprimer comme suit :

$$V_{k}^{i} = \frac{\sum_{j \in (voisins \ de \ k)} V_{j}^{i} \cdot g_{kj}^{i} + \sum_{r \in (i+1,i-1)} V_{k}^{r} \cdot g_{tc}^{i,r}}{\sum_{j \in (voisins \ de \ k)} g_{kj}^{i} + \sum_{r \in (i+1,i-1)} g_{tc}^{i,r}}$$
(2.8)

où i+1, i-1 représentent respectivement les couches supérieure et inférieure à la couche i, j représente les nœuds voisins au nœud k, g_{kj} représente la conductance entre les nœuds k et j, et $g_{tc}^{i,r}$ représente la conductance reliant les nœuds k de deux couches.

Ainsi, la forme matricielle des équations des nœuds, dans le cas où on n'a que trois couches comme l'illustre la FIGURE 2.19, peut être écrite comme :

$$\begin{pmatrix} G_c^1 & G_{tc}^{12} & 0\\ G_{tc}^{21} & G_c^2 & G_{tc}^{23}\\ 0 & G_{tc}^{32} & G_c^3 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} V_t^1\\ V_t^2\\ V_t^3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_t^1\\ I_t^2\\ I_t^3 \end{pmatrix}$$
(2.9)

où $G_{c_{nxn}}^1$, $G_{c_{nxn}}^2$ et $G_{c_{nxn}}^3$ sont respectivement les matrices de conductances des couches 1, 2 et 3 de taille $n \ge n$ avec n le nombre de fibres. $G_{tc_{nxn}}^{12}$, $G_{tc_{nxn}}^{23}$ sont des matrices diagonales



FIGURE 2.19 : (a) Illustration du modèle électrique 3D multi-couches sur la fibre k, (b) réseau de résistance 3D autour des nœuds de la fibre k

qui représentent respectivement les conductances reliant la couche 1 à la couche 2 et la couche 2 à la couche 3 et $G_{tc_{nrn}}^{21}$, $G_{tc_{nrn}}^{32}$ sont leur transposition.

2.4.2.2 Estimation de la résistance de contact entre deux fibres

Ayant une influence non négligeable sur la conductivité électrique transverse des matériaux composites unidirectionnels à fibres de carbone, la résistance de contact électrique R_c entre les fibres de carbone voisines est fréquemment négligée [119, 120, 121] ou déterminée de façon globale à partir d'essais expérimentaux [122, 123] ou encore à partir de l'équation (2.10) [124], dans la littérature par la communauté scientifique.

$$R_c = \frac{\rho_c}{A_c} \tag{2.10}$$

où A_c est l'aire de contact et ρ_c est la résistivité électrique de contact spécifique, une grandeur physique largement déterminée par la chimie locale entre les surfaces de contact et l'alignement entre les niveaux de Fermi des deux matériaux en contact.

En effet, l'estimation de la résistance de contact entre deux fibres de carbone voisines individuellement est très complexe. Dans notre travail de thèse, nous allons la déterminer à partir d'un modèle analytique basé sur la théorie de contact de HERTZ [125] et sur la formulation de HOLM [126] sur le calcul de la résistance de constriction (ou de compression) électrique. Cela fait l'objet des paragraphes ci-dessous où nous allons expliciter brièvement la théorie de contact de HERTZ et la formulation de HOLM.

Théorie de contact de HERTZ - Contact élastique

On appelle un contact « hertzien », tout contact entre deux matériaux provoquant une déformation de l'un des deux ou des deux en contact. A cet effet, considérons deux sphères de matériaux en contact, 1 et 2, caractérisées, respectivement par les rayons R_1 et R_2 , les modules élastiques E_1 et E_2 et les coefficients de Poisson ν_1 et ν_2 . De ce fait, lorsque la déformation est **élastique**, le point de contact entre les deux sphères est assimilé à un disque de rayon *a* avec un rapprochement relatif δ .

$$a = \left(\frac{3\pi}{4} \cdot \frac{(k_1 + k_2) R_1 R_2}{R_1 + R_2} \cdot F_c\right)^{1/3}$$
(2.11)

$$\delta = \left(\frac{9\pi}{16} \cdot \frac{\left(k_1 + k_2\right)^2 \left(R_1 R_2\right)}{R_1 R_2} \cdot F_c^2\right)^{1/3}$$
(2.12)

avec :

$$k_i = \frac{1 - \nu_i^2}{\pi E_i}$$
(2.13)

où $i = \{1, 2\}$ et F_c est la force de presse subie par deux fibres voisines individuellement en contact.

Dans cette étude, nous considérons les sphères comme des fibres de carbone de même nature et de tailles constantes ($R_1 = R_2 = R$, $E_1 = E_2 = E$ et $\nu_1 = \nu_2 = \nu$). Le rayon équivalent *a* de la surface de contact entre deux fibres de carbone voisines individuellement et leur rapprochement relatif δ sont liés à la force de presse locale F_c par les équations ci-dessous :



FIGURE 2.20 : Contact entre deux fibres de révolution (contact de Hertz)).

$$a = \left(\frac{3}{4} \cdot \frac{R_e F_c}{E_e}\right)^{1/3} \tag{2.14}$$

$$\delta = \left(\frac{9}{16} \cdot \frac{F_c^2}{R_e} \cdot E_e^2\right)^{1/3} \tag{2.15}$$

avec :

$$\frac{1}{R_e} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \quad et \quad E_e = \pi \cdot (k_1 + k_2)^{-1}$$
(2.16)

où E_e et R_e sont respectivement le module d'élasticité effectif renormalisé par le coefficient de Poisson ν et le rayon effectif des fibres.

Par conséquent, connaissant le rapprochement relatif δ entre chaque couple de fibres voisines en contact grâce à notre programme MATLAB[®] de génération de la microstructure 2D représentatif par rapport à un paramètre de chevauchement qui permet d'assurer un contact électrique entre fibres au niveau de chaque couche. Nous déduisons à partir de l'équation (2.15) la force de presse locale F_c responsable du contact entre fibres voisines individuellement en contact.

$$F_c = \left(\frac{16}{9} \cdot \frac{\delta^3 \cdot R_e}{E_e^2}\right)^{1/2} \tag{2.17}$$

Formulation de HOLM sur le calcul de la résistance constriction électrique

Lorsque deux matériaux conducteurs sont en contact électrique à travers une petite surface, il existe une résistance de contact R_c appelée aussi résistance de contriction qui permet de les connecter électriquement. À cet effet, HOLM [126] a calculé la résistance de constriction entre conducteurs avec différentes configurations. Il en déduit que la résistance du contact de deux conducteurs dépend de la résistivité des deux conducteurs et de la surface de contact et est définie comme suit :

$$R_c = \frac{\rho_1 + \rho_2}{4a} \tag{2.18}$$

où ρ_1 et ρ_2 sont les résistivités des deux conducteurs et *a* le rayon de la surface de contact qui est définie par l'équation (2.14).

Par conséquent, dans le cas de deux fibres de carbone de même nature avec une résistivité ρ , la résistance de contact entre deux fibres voisines est égale à :

$$R_c = \frac{\rho}{\sqrt[3]{\left(\frac{3R_eF_c}{E_e}\right)}}$$
(2.19)

Cette approche a été retenue et appliqué pour l'évaluation de R_c dans la suite de l'étude.

2.4.2.3 Résolution numérique

L'équation 2.8 écrite sous une forme de système matricielle de l'équation 2.9 permet d'obtenir un système d'équations linéaires $n \ge n$ multiplié par le nombre de couches, avec comme inconnues les potentiels aux nœuds. L'obtention du tenseur de conductivité se fait en réalisant une simulation volt ampèremétrique en continu, les potentiels électriques V_d et V_g sont imposés respectivement sur les nœuds des fibres de la première couche i et dernière couche n, puis on résout le système matriciel de l'équation 2.9 issue de l'équation 2.8 pour obtenir les potentiels à chaque nœud. Ces potentiels permettent de calculer le courant d'entrée I_e ou de sortie I_s et donc de déterminer la résistance équivalente R_x dans le sens d'orientation des fibres et la conductivité σ_x .

$$R_x = \frac{V_g - V_d}{I_e} \tag{2.20}$$

$$\sigma_x = \frac{L}{R_x \cdot S_{yz}} \tag{2.21}$$

où *L* est la longueur de l'échantillon la direction \overrightarrow{x} d'orientation des fibres et S_{yz} est la section du matériau dans le sens \overrightarrow{x} .

Pour déterminer la conductivité transverse au sens d'orientation des fibres (\overrightarrow{y}) , la même simulation est utilisée en imposant cette fois-ci les potentiels électriques V_d et V_g respectivement sur les nœuds en contact avec les bords droit et gauche à la direction transverse à l'orientation des fibres. On détermine la résistance équivalente R_y et la conductivité équivalente σ_y par les relations ci-dessous :

$$R_y = \frac{V_g - V_d}{I_e} \tag{2.22}$$

$$\sigma_y = \frac{l}{R_x \cdot S_{zx}} \tag{2.23}$$

où l est la largeur de l'échantillon dans le sens transverse des fibres (\vec{y}) et S_{zx} est la section du matériau dans l'axe \vec{y} . Par analogie, la conductivité dans le sens de l'épaisseur \vec{z} est obtenue en remplaçant dans l'équation 2.23 la section S_{zx} par la section S_{xy} . Le tenseur de conductivité électrique diagonal homogénéisé $[\sigma]$ du composite est défini alors comme suit :

$$[\sigma] = \begin{pmatrix} \sigma_x & 0 & 0\\ 0 & \sigma_y & 0\\ 0 & 0 & \sigma_z \end{pmatrix}$$
(2.24)

2.4.3 Résultats de modélisation et discussions

Sur la FIGURE 2.21, nous avons représenté l'évolution de la conductivité électrique en fonction de la fraction volumique de fibres. Par ailleurs, pour chaque fraction volumique de fibres de la FIGURE 2.21, nous avons généré 41 VER du matériau virtuel aléatoirement et calculé leurs valeurs moyennes de la conductivité électrique à chaque taux de remplissage.



FIGURE 2.21 : Évolution de la conductivité moyenne en fonction de la fraction volumique de fibres

À cet effet, nous constatons que la conductivité électrique longitudinale à la direction d'orientation des fibres (\vec{x}) croît proportionnellement avec la fraction volumique de fibres de façon linéaire. Cette conductivité dépend principalement du taux remplissage et de la résistivité électrique intrinsèque des fibres étant donné que le courant circule à travers

les fibres qui peuvent être considérées comme un faisceau de résistances en parallèle. Par conséquent, cette conductivité longitudinale ne dépend pas, voire très peu, des contacts électriques qui peuvent exister entre fibres. Elle peut être définie comme une fonction linéaire (équation (2.26)) associée à la fraction volumique de fibres ϕ_f de coefficients de proportionnalités la conductivité électrique intrinsèque des fibres σ_f et déduite analytiquement de la loi des mélanges (modèle des résistances parallèles (équation (2.26))) en supposant négligeable la conductivité électrique σ_m de la matrice isolante par rapport à celle des fibres σ_f .

$$\sigma_L = \phi_f \cdot \sigma_f + (1 - \phi_f) \cdot \sigma_m \tag{2.25}$$

$$\sigma_L \simeq \phi_f \cdot \sigma_f \quad \to \quad \text{si} \quad \sigma_f \gg \sigma_m \tag{2.26}$$

Quant aux conductivités électriques transverses à la direction d'orientation des fibres (\vec{y} et \vec{z}), elles croissent proportionnellement avec la fraction volumique de fibres de manière exponentielle. Ces conductivités transverses dépendent aussi bien de la fraction surfacique que de l'ondulation et la distribution aléatoire des fibres dans la microstructure. Les contacts électriques entre fibres créent des chemins de conduction électrique continus qui contribuent au mécanisme de conduction électrique transverse. Yu et *al* [127] et Park et *al* [128] ont montré cette corrélation dans leurs travaux de recherche. Toutefois, bien que ce mécanisme ait été mentionné dans la littérature, il n'y a pas de modèle quantitatif construit sur la base de ce mécanisme de conduction électrique transverse (phénomène de percolation) des matériaux composites à renfort unidirectionnelle. Ainsi, une étude statistique pour estimer la taille d'un volume élémentaire représentatif du matériau composite, pour une marge d'erreurs donnée dans l'estimation de la conductivité électrique transverse est nécessaire. Ce travail est effectué dans la sous-section suivante.

2.4.3.1 Détermination de la taille optimale de la cellule de VER

Pour l'étude de la taille optimale du matériau virtuel, nous avons choisi les dimensions suivant \vec{y} et \vec{x} de 130 μ m×130 μ m et plusieurs tailles (longueur) différentes dans la direction d'orientation des fibres \vec{z} pour mettre en évidence l'influence du nombre de contacts entre les fibres, l'arrangement spatial des fibres dans les différentes couches et l'ondulation des fibres. En outre, nous faisons l'hypothèse que l'influence de la section du VER sur les propriétés électriques soit négligeable. De ce fait, pour chaque taille nous avons généré 41 géométries de VER 3D d'une fraction volumique de fibre de 60% avec la procédure décrite dans la sous-section 2.4 puis évaluer leur conductivité électrique respective. Nous avons ensuite utilisé la loi de STUDENT pour calculer les limites de confiance des résultats obtenus.

La FIGURE 2.22 illustre les limites de confiance à 90% de la conductivité électrique trans-



FIGURE 2.22 : Limites de confiance de la conductivité électrique transverse

verse à la direction des fibres. Nous observons qu'à partir des tailles supérieures à 0,02 m, l'erreur sur la conductivité tranverse ne dépasse pas les 10%. C'est cette taille que nous considérons comme taille optimale du VER pour la suite de l'étude.

2.4.3.2 Étude de sensibilité

Nous allons chercher à déterminer la sensibilité de la conductivité électrique transverse suivant deux paramètres : la distance moyenne entre deux contacts électriques et la valeur de la résistance de contact. Cette étude nous permettra de quantifier l'influence de ces paramètres sur les calculs réalisés.

En analysant la FIGURE 2.23(a), nous pouvons conclure de cette étude de sensibilité que la conductivité électrique longitudinale (direction des fibres) est indépendante de la distance moyenne entre deux contacts électriques et cela pour différents taux volumique de fibres. Par ailleurs, les observations des FIGURES 2.23(b), 2.23(c) et 2.23(d) montrent que la conductivité électrique transverse est sensible à la distance moyenne entre deux contacts électriques. Cette conductivité décroît avec l'augmentation de la distance moyenne entre deux contacts des moins marquée lorsque cette distance est supérieure à 280μ m.



FIGURE 2.23 : Sensibilité sur la distance moyenne entre deux contacts électriques sur les conductivités électriques longitudinale et transverse pour différents % volumiques de fibres.

2.4.3.3 Comparaisons par rapport aux modèles analytiques

Plusieurs modèles analytiques d'estimation de la conductivité électrique de matériaux composites ont été décrits dans chapitre1 de l'état de l'art (section1.4). Dans cette sous-section, les résultats d'estimation de la conductivité électrique transverse à la direction des fibres aux modèles de Pilling et *al* [129] (équation (2.27)), de Clayton [130] (équation (2.28)) et de Wiener ou modèle série (équation (1.2)) qu'on retrouve dans la littérature pour les composites UD, sont confrontés à ceux de notre modélisation. La FIGURE 2.24 illustre les résultats de cette comparaison. Comme nous l'avons déjà exposé dans le chapitre1 de l'état de l'art (section1.4), nous observons sur la FIGURE 2.24, la limite des modèles analytiques à estimer la conductivité transverse des matériaux composites à renforts unidirectionnels, du fait qu'ils ne prennent pas en compte le phénomène percolation, particulièrement pour les fortes fractions volumiques de fibres.



FIGURE 2.24 : Étude comparative entre les modèles analytiques et notre modèle de percolation sur l'estimation de la conductivité électrique transverse.

$$\sigma_T = \sigma_m \frac{(1 - \Phi_f)\sigma_m + (1 + \Phi_f)\sigma_{f,r}}{(1 - \Phi_f)\sigma_{f,r} + (1 + \Phi_f)\sigma_m}$$
(2.27)

$$\sigma_T = \frac{\sigma_m}{4} \left[\sqrt{(1 - \Phi_f)^2 \cdot (\frac{\sigma_{f,r}}{\sigma_m} - 1)^2 + \frac{4\sigma_{f,r}}{\sigma_m}} - (1 - \Phi_f) (\frac{\sigma_{f,r}}{\sigma_m} - 1) \right]^2$$
(2.28)

où $\sigma_{f,r}$ est la conductivité électrique radiale (ou transverse) d'une fibre, Φ_f la fraction volumique des fibres, σ_m est la conductivité de la matrice.

2.4.4 Validation expérimentale

Pour valider notre modèle expérimentalement, des mesures de conductivités sont effectuées sur une plaque de 10 plis unidirectionnels tous orientés dans une même direction avec un taux de remplissage volumique de fibre de 60%. Les différents échantillons de cette plaque sont de même type que ceux déja caractérisés par G. WASSELYNCK [2] dans sa thèse avec un impédance-mètre AGILENT 4924A. Dans ces travaux, nous avons utilisé le banc d'essai volt-ampérimétrique avec la méthode des deux points développée au chapitre 3 pour caractériser ces éprouvettes. La FIGURE 2.25 illustre les résultats de la conductivité transverse de notre modèle de cellule de VER du matériau composite UD. Nous constatons, à cet effet une dispersion avec une incertitude de mesure de ± 0.55 non négligeable des résultats du modèle sur 41 VER générés.



FIGURE 2.25 : Conductivité électrique transverse calculée.

Cette dispersion peut s'expliquer en partie par le caractère aléatoire du placement des fibres dans les différentes couches qui induisent les différents contacts électriques entre fibres voisines, responsable du mécanisme de conduction transverse. Pour s'assurer que les calculs effectués sont cohérents, les résultats obtenus pour la conductivité électrique transverse sont confrontés aux résultats de mesures sur une éprouvette d'un matériau composite stratifié de 10 plis unidirectionnels tous orientés dans une même direction. À cet effet, nous supposons pour valider ces résultats, que les 10 plis unidirectionnels de la plaque composite ont une même épaisseur, la résistance de contact électrique entre plis est négligeable et que les plis ne sont pas désorientés.

Conductivité Moyenne	Expérimentale ($S m^{-1}$)	Modèle ($ m Sm^{-1}$)	Diff (%)
Transverse	$6,74 \pm 0,08$	$6,22\pm0,55$	7,7

TABLE 2.1 : Bilan des estimations de la conductivité transverse d'un composite UD de fraction volumique en fibre de 60%.

La TABLE 2.1 illustre la comparaison entre les conductivités électriques transverses moyennes calculée et mesurée. L'écart de 7,7% que l'on observe entre la conductivité électrique transverse mesurée et calculée rentre dans notre intervalle de confiance et peut s'expliquer par les différents défauts de la mise en œuvre de la plaque composite (désorientation des plis, porosité, déformation, etc.), aux hypothèses simplificatrices du modèle, etc., qui peuvent affecter cette conductivité transverse. Cette corrélation confirme la validité du modèle développé pour le calcul des conductivités effectives des composites unidirectionnels.

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, un modèle basé sur une méthode d'homogénéisation **multi-échelle** avec une prise en compte de la percolation a été développé puis programmé en utilisant la méthode du réseau de résistances équivalentes sous MATLAB[®]. Ce modèle s'est montré très satisfaisant, rapide et extrêmement simple à mettre en place, pour l'estimation du tenseur de conductivité électrique des matériaux composites à renforts UD. Cette méthode d'homogénéisation **multi-échelle** sera appliquée sur un matériau composite tissé (Satin 5H) dans le chapitre 4 de manière à prédire son comportement électrique effective. Pour valider par la mesure notre modèle de prédiction du comportement électrique de ces matériaux composites, un banc d'essai a été mis en place dans cette intention. Le développement du banc d'essai de caractérisation électrique et la mise en place d'un protocole expérimental font objet du chapitre suivant.

DÉVELOPPEMENT D'UN BANC D'ESSAI DE CARACTÉRISATION ÉLECTRIQUE

Sommaire

3.1	Introduction		91
3.2	Dispositif du banc d'essai expérimental		91
	3.2.1	Objectifs	91
	3.2.2	Description générale du banc d'essai	93
3.3	Prése	ntation des éprouvettes de matériaux composites	94
	3.3.1	Films de résines polymères chargés	94
	3.3.2	Plaques de composites stratifiés à plis tissés	95
	3.3.3	Couches minces conductrices	97
3.4	Protocole de mesure électrique		97
	3.4.1	Caractérisation électrique des films et plaques composites	98
	3.4.2	Caractérisation électrique des couches minces conductrices	101
3.5	Analy	se de la méthode de mesure	105
	3.5.1	Limites du banc d'essai	105
	3.5.2	Illustration expérimentale de la validé du protocole de mesure	110
3.6	.6 Conclusion		

3.1 Introduction

Comme nous l'avons vu dans chapitre1, il existe de grandes difficultés dans la modélisation des propriétés physiques des matériaux composites complexes. Cette contrainte peut entraîner des doutes sur l'interprétation de leur comportement physique considéré, ainsi que la validité des modèles de prédiction. De ce fait, une validation expérimentale s'amène nécessaire. Pour cela, nous avons développé, réalisé et mis au point un banc d'essai de caractérisation du tenseur de conductivité électrique, adapté à la complexité des matériaux composites.

3.2 Dispositif du banc d'essai expérimental

3.2.1 Objectifs

Notre objectif est de développer une technique de mesure simple et souple qui nous permette de déduire rapidement la conductivité électrique tout en offrant un niveau de précision élevé. Elle doit nous permettre de mesurer une large gamme de conductivité électrique allant de 10^{-2} à 10^{+5} $S.m^{-1}$, afin de détecter le seuil de percolation statique. La caractérisation électrique des matériaux offre une importante diversité de méthodes de mesure. Bon nombre d'entre elles permettent de mesurer les propriétés électriques de matériaux isotropes avec plus ou moins de précision. Toutefois, ces méthodes de mesure peuvent s'avérer inadaptées pour la caractérisation électrique des matériaux composites complexes dont les propriétés physiques sont généralement anisotropes et non-linéaires.

3.2.1.1 Contraintes de caractérisation électrique des matériaux composites

Suivant la méthode de mesure de la conductivité électrique (avec ou sans contact), les difficultés de caractérisation électrique des matériaux composites sont diverses. D'une part, pour les méthodes avec contact (volt-ampéremétriques) les principales contraintes sont :

- \rightarrow difficulté de mise sous tension de toutes les fibres et de prendre en compte l'orientation des plis UD, dans le cas des composites stratifiés ;
- \rightarrow caractère anisotrope des matériaux composites, qui ne possèdent pas les mêmes conductivités électriques suivant ces directions principales;
- \rightarrow variation de la conductivité électrique par rapport à la température (un courant élevé injecté dans un échantillon de composite peut chauffer ce dernier);

 \rightarrow difficulté de réaliser des contacts électriques de grande qualité sur les matériaux composites thermoplastiques, etc.

D'autre part, avec les méthodes sans contact, les principales difficultés reposent sur le fait que les Courants de Foucault (CF) ne sont pas directement mesurables, sur l'identification des chemins de circulation des courants induits et du flux de chaleur dans les fibres, entre les fibres et entre les plis, etc. À cela on peut rajouter les hypothèses qui sont imparfaitement réalisables lors des expériences (imprécision sur la position des capteurs et les dimensions des échantillons, etc.). On a aussi des difficultés liées à la modélisation des phénomènes électromagnétiques des matériaux composites complexes, notamment :

- \rightarrow le facteur d'échelle et l'anisotropie ;
- \rightarrow les propriétés physiques non linéaires ;
- \rightarrow la mesure des grandeurs globales ou indirectes expérimentales sont des sources erreurs liées aux capteurs de mesure, à l'environnement, etc.

Toutes ces difficultés rendent la caractérisation électrique des matériaux composites complexes très délicates.

3.2.1.2 Choix de la méthode de caractérisation électrique des matériaux composites

Dans le cadre de l'identification de la conductivité électrique des matériaux composites, on est amené à caractériser des matériaux composites, allant de faiblement conducteurs à très bon conducteurs. Ainsi, suivant la valeur de la résistivité électrique à mesurer, on fait appel à une méthode plutôt qu'à une autre, comme on peut le voir sur la FIGURE 3.1.



FIGURE 3.1 : Configuration de mesure des résistivités (ou résistances) électriques

Il faut donc examiner suivant l'ordre de grandeur de la gamme de résistivité électrique à mesurer, la méthode la plus fine et l'adapter à la complexité de la structure du matériau composite à caractériser.

La méthode des courants induits (méthode sans contact) est préconisée, généralement, pour l'identification de la résistivité électrique des matériaux très conducteurs ($\rho < 10^{-5} \Omega.m$), afin de s'affranchir, des résistances parasites (dûs aux contacts électriques, fils de connexions, etc.). Cependant, à fréquence élevée, les courants induits ont tendance à ne circuler qu'à la surface de l'échantillon. Cela fait encourir le risque de mesurer une conductivité électrique surfacique. Or, la variation de la profondeur de pénétration (l'effet de peau) de l'onde électromagnétique dépend essentiellement de la valeur de la conductivité électrique et de la fréquence qui détermine l'épaisseur de la zone (épaisseur de peau) où se concentrent les courants induits dans l'échantillon conducteur. Cette épaisseur de peau décroît lorsque la fréquence croît. Dès lors, il faut exciter ce dernier avec un générateur de fréquence suffisamment faible [96] pour augmenter l'épaisseur de peau de manière à ce que les courants induits circulent sur tout le volume de l'échantillon.

La méthode volt-ampèremétrique est la plus adaptée à la caractérisation des matériaux de résistivité électrique moyenne ($10^{-5} \Omega.m < \rho < 10^{17} \Omega.m$). Elle est assez facile à mettre en œuvre et couvre la gamme de conductivité électrique des matériaux composites que l'on souhaite caractériser. De ce fait, notre choix s'est porté sur cette méthode voltampèremétrique qu'on adaptera à la morphologie de nos matériaux composites complexes de façon à lever certaines contraintes à l'identification de la conductivité électrique, tout en réduisant au maximum les sources d'erreurs.

3.2.1.3 Conclusion

Pour faire face à ces contraintes, on doit s'assurer que les instruments de mesures à utiliser sont bien adaptés à la gamme de tension et de courant à mesurer (bonne résolution et précision, etc.). Des courants électriques de faible intensité doivent être injectés dans les échantillons afin d'éviter des phénomènes d'échauffement diffus ou localisés. En plus de cela, on doit optimiser la méthode de mesure, en prenant en compte en amont les causes des sources d'erreurs potentielles. Le choix des instruments de mesures a été conditionné par un certain nombre de facteurs : la gamme de conductivité électrique à mesurer, les contraintes expérimentales, les causes d'incertitudes potentielles, etc.

3.2.2 Description générale du banc d'essai

Le choix technique et de dimensionnement du banc de mesures reposent sur plusieurs contraintes qui ont été spécifiées dans la section précédente. De ce fait, un dispositif expérimental volt-ampérimétrique a été dimensionné, réalisé et mis au point pour mesurer la résistance électrique de ces matériaux composites complexes vu qu'il n'y pas d'antériorité au laboratoire IREENA sur ce type caractérisation. Le banc d'essai de caractérisation électrique se compose des éléments suivants :

- un nanovoltmètre de type KEITHLEY[®] modèle 2182A;
- une source de courant DC/AC de type KEITHLEY[®] modèle 6221, avec gamme en courant entre 4 pA 210 mA et en fréquence entre 1 mHz 100 kHz;
- un PC de pilotage;
- et des câbles : GPIB, Trigger Link, et RS-232.

Le nanovoltmètre KEITHLEY[®] modèle 2182A est un instrument de précision capable de prendre des mesures de tension stables, à faible bruit et de caractériser de manière fiable et répétée des matériaux de faible résistance électrique. De même, la source de courant KEITHLEY[®] modèle 6221 est un appareil de précision capable de fournir des courants de très faibles intensités stabilisés, évitant de ce fait les phénomènes d'échauffement diffus ou localisés. Ces deux instruments de mesure sont combinés en mode delta, via un câble Trigger Link Modèle 8501-2 et un câble RS-232 qui leur permettent de communiquer et de se synchroniser entre eux, tout en éliminant les éventuels problèmes de bruit de mesure et d'isolation pouvant affecter les mesures. L'ensemble est relié à un ordinateur via un câble GPIB-USB-HS qui permet le pilotage des instruments et l'acquisition des mesures instantanément par l'intermédiaire du logiciel KI6220 de Keithley[®] Instruments Inc.

3.3 Présentation des éprouvettes de matériaux composites

Les matériaux composites utilisés dans cette étude seront utilisés pour l'élaboration de structures destinées principalement à l'industrie aéronautique. Tous les échantillons mis à notre disposition ont été fabriqués par nos partenaires du projet FUI ACCEA. Il s'agit de films de résines polymères chargés en graphites de carbone fournis par la société AR-KEMA, de plaques de composites tissées fournies par SAFRAN COMPOSITES et des couches minces conductrices fournies par LIFCO Industrie.

3.3.1 Films de résines polymères chargés

Ces films sont obtenus par l'incorporation de charge en graphite de carbone dans une résine polymère thermoplastique isolante à partir d'un procédé de moulage par injection. Le dopage de la résine polymère permet d'améliorer les propriétés électriques et thermiques des films de résines polymères obtenus, sans dégrader ces propriétés mécaniques. Toutefois, le dopage de la résine polymère thermoplastique par des charges en graphite de carbone à des fractions volumiques élévées peut dégrader les propriétés mécaniques des films résultants [26]. C'est dans cette optique que des études mécaniques préliminaires faites au sein d'ARKEMA ont mis en évidence qu'à partir d'une fraction volumique de graphite de carbone bien identifiée, les propriétés mécaniques des films polymères chargés sont dégradées. Dans ce projet R&D FUI ACCEA, nous avons étudié et caractérisé trois types de résines polymères thermoplastiques de natures différentes chargées en graphite de carbone afin de comparer leur comportement électrique. Les résultats de la caractérisation électrique en statique de ces film chargés étant confidentiels, ils ne seront pas présentés dans ce document.

3.3.2 Plaques de composites stratifiés à plis tissés

Les plaques de composites stratifiés ont été fabriquées à partir de l'empilement de plusieurs plis tissés pré-imprégnés selon la stratification (ou plan de drapage) souhaitée, en intercalant un ou plusieurs films polymères chargés en graphite de carbone entre eux. La consolidation de cet empilement a été effectuée sous une presse chauffante PEI (Pinette Emidecau Industries) de 500 tonnes dans un moule « RTM (Resine Transfert Molding) » 400x400 mm (FIGURES 3.2 et 3.3) par « film stacking » suivant un procédé de thermocompression mis en place par SAFRAN COMPOSITES.



FIGURE 3.2 : Fabrication des plaques composites stratifiées : (a) empilement de plis préimprégnés et (b) moule RTM 400x400mm.

Le but de cette mise en œuvre est de produire un matériau composite stratifié à plis tis-

sés qui verrait ses propriétés électriques et thermiques transverses (suivant l'épaisseur) améliorées par le dopage des films polymères en graphite de carbone. Les cycles de températures et de pressions appliqués pour la consolidation des plaques stratifiées sont illustrés dans la FIGURE 3.4 ci-dessous. À cet effet, pour une bonne imprégnation des plis tissés, un maintien de la température constante sur une certaine durée est nécessaire. Cela permet aux films polymères chargés de se diffuser sous l'effet de la température dans les tissus tissés avec des taux de porosités très faibles. Les plaques de composites sont conçues avec une orientation des plis dans une même direction + films de polymères chargés.



FIGURE 3.3 : Schéma du dispositif de consolidation utilisé par thermo-compression des plaques composites



FIGURE 3.4 : Cycle de températures de consolidation par presse chauffante appliqué pour la fabrication des plaques composites stratifiées par « film stacking ».

3.3.3 Couches minces conductrices

Des échantillons de peintures en poudres conductrices sous forme de couches minces sur des substrats de matériaux composites ont été caractérisées afin de quantifier leur apport sur la conductivité globale des composites.

3.4 Protocole de mesure électrique

Le processus de mesure de la résistance électrique est d'injecter un courant aux échantillons de matériaux et de mesurer la tension résultante aux bornes de ces derniers. La valeur de la résistance électrique est déduite à partir de la loi d'Ohm. Toutefois, plusieurs sources d'erreurs relatives à la chaîne de mesure et à l'environnement extérieur peuvent affecter la précision des mesures. Pour prendre en compte un certain nombre de sources d'erreurs (tensions thermoélectriques $\backsim \mu V$) susceptibles d'affecter la mesure de la tension, les mesures de résistances électriques sont réalisées avec la méthode d'inversion de courant ou « DC current reversal method » dont les avantages sont énumérés dans le chapitre 1 de l'état de l'art.



FIGURE 3.5 : Méthode de mesure de résistance électrique à courant constant avec un point de mesure toutes les trois secondes.

Cette méthode consiste à injecter consécutivement deux courants de même valeur mais de polarité opposée. Deux tensions sont alors mesurées aux bornes de l'échantillon : V^+ et V^- entachées de tensions thermoélectriques. Ces tensions gardant la même polarité,

quel que soit le sens du courant, peuvent être éliminées par moyenne des deux tensions correspondantes à des mesures consécutives sous deux courants de même intensité mais de polarité opposée.

$$R_{ech} = \frac{V^+ - V^-}{I^+ - I^-} \tag{3.1}$$

De la même manière, l'usage de cette méthode permet de réduire le bruit blanc d'un facteur deux [131]. Ce principe d'alternance du courant pour la caractérisation des résistances électriques des matériaux est d'ailleurs repris dans la norme NF EN 60512-2-1 [132]. Cependant, pour étudier la répétabilité des résultats de mesurage, un seul point de mesure ne suffit pas à caractériser la résistance électrique, étant donné que cette dernière peut évoluer dans le temps. De ce fait, un certain nombre de points de mesures définis sur la FIGURE 3.5, à intervalles réguliers, est choisi dont le nombre et le délai entre chacun d'eux définissent la durée totale de la mesure.

3.4.1 Caractérisation électrique des films et plaques composites

Pour la mesure de la résistance électrique de nos échantillons de films de résines polymères chargées en graphite de carbone et des plaques de composites stratifiés, nous avons utilisé la méthode volt-ampérimétrique des deux points (FIGURE 3.6) en mode delta.



FIGURE 3.6 : Méthode des deux points : (a) schéma de mesure et (b) les différentes résistances du circuit de mesure

En effet, vu la complexité de l'architecture de nos éprouvettes de plaques de matériaux composites stratifiés et la méconnaissance du chemin circulation du courant entre plis dans les composites stratifiés, l'interprétation et la validation de l'usage de la méthode des quatre points posent problème sur la mesure de tension en surface des échantillons (FI-GURE 3.7) sur ces matériaux. L'existence de la circulation de courant entre deux plis UD $[0^o/90^o]$ d'un matériau composite stratifié a été mise en évidence par G. Wasselynck [2] dans sa thèse. De ce fait, l'hypothèse qui consiste à considérer, par exemple dans le cas des matériaux homogènes isotropes classiques, les équipotentielles cylindriques et les lignes

de courants sphériques avec la méthode des quatre points n'est plus valide pour ces matériaux composites à architecture complexe [133].



FIGURE 3.7 : Méthode des quatre points : (a) schéma de mesure et (b) les différentes résistances du circuit de mesure

En outre, cette méthode des deux points permet d'optimiser l'estimation de la section de passage du courant dans le composite.

Dans un premier temps, des électrodes en cuivre ont été réalisées (FIGURE 3.8) pour l'injection du courant et la mesure de la tension aux bornes des échantillons.



FIGURE 3.8 : Structure du banc d'essai de caractérisation électrique des composites.

Dans un second temps, les extrémités des échantillons ont été polies mécaniquement, afin d'éliminer la couche de résine superficielle résultant du procédé de fabrication susceptible d'augmenter la résistance de contact. Puis, nous avons métallisé les surfaces de contacts par une fine couche d'or afin de faciliter l'injection du courant électrique dans les éprouvettes, de minimiser la résistance de contact, la puissance dissipée par effet Joule et par conséquent les échauffements localisés associés au passage du courant. Ce dépôt d'or a été réalisé à notre demande au laboratoire GeM à Saint-Nazaire. Une étude comparative entre un échantillon de plaque de composite stratifié de surface non métallisée et métallisée a montré une différence peu significative. Au final, nos éprouvettes ne seront pas métallisées, pour la suite de cette étude.

Par ailleurs, pour améliorer la mise en contact électrique entre les électrodes de cuivre et la surface des échantillons de composites, un dispositif de compression (support de fixation de la FIGURE. 3.8) a été mis en place. Ce dispositif permet d'appliquer une pression homogène sur la surface de contact des échantillons afin d'améliorer la qualité du contact électrique. De plus, cette pression agissant sur les contacts électriques a un impact sur la résistance électrique de contact [134, 135], comme l'illustre la FIGURE 3.9. Par conséquent, la pression à appliquer doit être suffisamment forte pour que la résistance mesurée soit indépendante de la pression.



FIGURE 3.9 : D'après [135] Variation de la résistance de contact en fonction de l'effort normal sur le contact.

Remarque : la pression à appliquer ne doit pas non plus être excessive, car cela risque de créer des défauts internes (fissures, délamination, etc.) dans les éprouvettes induisant de ce fait des erreurs sur la mesure.

Toutefois, la résistance électrique R_t mesurée par la loi d'ohm avec la méthode de deux points est composée d'une somme de résistances : la résistance électrique intrinsèque de l'échantillon R_{ech} + la résistance des contacts électriques R_c . Pour prendre en compte la résistance des contacts électriques R_c , elle doit être préalablement identifiée puis soustraite à la résistance R_t mesurée. L'identification de cette résistante des contacts se fait en prenant des éprouvettes de largeur ℓ et d'épaisseur *e* identique mais de longueurs *L* différentes. Nous faisons l'hypothèse que R_c et σ ne dépendent pas de *L*. De ce fait, la résistance R_t mesurée exprime une dépendance linéaire en fonction de la longueur *L* de l'éprouvette, dont la valeur en L = 0 permet d'identifier la résistance des contacts électriques R_c [136, 137, 138].

$$R_t = \frac{1}{\sigma} \cdot \frac{1}{e \cdot \ell} \cdot \mathbf{L} + R_c \tag{3.2}$$

$$R_{ech} = R_t - R_c \tag{3.3}$$

Lors de la fabrication, il peut y avoir des disparités des propriétés électriques dû aux paramètres du procédé de mise en œuvre. Une découpe volontaire sur la plaque de matériau composite stratifié de dimension 400x400 mm d'éprouvettes dans les zones poreuses et peu poreuses a été effectuée, afin de détecter ces possibles disparités.

3.4.2 Caractérisation électrique des couches minces conductrices

Les méthodes volt-ampérimétriques généralement utilisées pour la caractérisation électrique des couches minces conductrices sont : la méthode des quatre points et la méthode de VAN DER PAW [139, 140, 141, 142]. La méthode des quatre points a été retenue par la suite pour sa facilité de mise en œuvre et précision.

3.4.2.1 Méthode des quatre points

C'est une méthode très utilisée pour la caractérisation des couches minces pour s'affranchir des résistances des contacts. En effet, dans cette méthode on injecte le courant en deux points (*a*-*d*) et on mesure la tension entre deux autres points (*b*-*c*), comme l'illustre la FIGURE. 3.10. La mesure de la tension étant découplée de l'injection du courant, par conséquent l'effet de la résistance de contact est éliminé vu que le voltmètre a une impédance d'entrée très grande. De ce fait, le rapport entre la tension *V* et le courant *I* est le produit de la résistivité électrique de l'échantillon et d'un facteur de correction géométrique K_{GM} qui dépend de la géométrie de l'échantillon et de la position des contacts [143], [144].

$$\frac{V}{I} = \rho \cdot K_{GM} = \frac{1}{\sigma} \cdot K_{GM}$$
(3.4)



FIGURE 3.10 : Principe de la détermination de la conductivité électrique de couche mince sur substrat non conducteur par la méthode des quatre points

Ce facteur de correction géométrique dans le cas des couches minces d'une épaisseur *e* où on considère les quatre pointes alignées (Figure 3.10), équidistantes d'une distance *s* petite par rapport aux dimensions de l'échantillon ($e \ll s$), et que le courant injecté se répartit radialement, est égale à :

$$K_{GM} = \frac{\ln\left(2\right)}{\pi \cdot e} \tag{3.5}$$

Toutefois, cette technique est très sensible à la géométrie de l'échantillon. Pour prendre en compte cette sensibilité, une des solutions proposée est d'utiliser en support une méthode inverse qui, à l'aide de mesures expérimentales couplées à un modèle numérique ou analytique [143], [145], [146], fait tendre les paramètres à identifier du modèle numérique ou analytique vers les grandeurs globales cibles expérimentales. En plus, des précautions importantes doivent être prises notamment en ce qui concerne la pénétration des pointes des contacts dans le substrat vu que CLARYSSE et al [147] ont montré que lorsque les pointes pénètrent dans le substrat, ils induisent des fuites de courant qui vont engendrer une diminution de la résistance de la couche mince mesurée et donc une erreur sur la mesure pouvant dépasser les 300%.

3.4.2.2 Mise en œuvre du dispositif quatre points pour la caractérisation électrique

Pour mesurer directement la résistance surfacique R_s , nous avons utilisé un dispositif de quatre pointes (ou tête de quatre pointes), modèle SP4–40085TRS de chez MICRO-WORLD[®]. Cette tête de mesure est constituée de quatre pointes alignées en tungstène et régulièrement espacées de 1 mm avec un rayon de 40 μ m et pouvant supporter une pression de 85 g. On injecte un courant *I* circulant par les bornes extérieures et on mesure la tension *V* par les bornes des deux pointes intérieures. L'injection du courant est faite en mode delta pour supprimer les tensions thermoélectriques, et son intensité doit être de faible valeur (~200 μ A) pour éviter les phénomènes d'échauffements (diffus ou localisés) des échantillons. Pour la mise en contact électrique des quatre pointes sur les éprouvettes de couches minces, nous avons mis en place un système composé d'une potence de maintien de la tête de tests avec levier de descente afin de maintenir toutes les pointes en contact. Les instruments de mesure utilisés sont ceux décrits dans la section 3.2.2. À cet effet, la surface des couches minces a été maillée afin d'étudier l'impact du procédé de mise en œuvre sur la répartition de la couche mince sur le substrat composite.



FIGURE 3.11 : Banc de test pour la caractérisation électrique des éprouvettes couches minces : (a) maillage de la surface des couches minces et (b) tête de mesure 4 pointes.

L'évaluation de l'épaisseur *e* de ces couches minces a été mise en œuvre suivant, deux techniques d'évaluation d'épaisseur : par profilométrie et par microscopie électronique à balayage (MEB). Le profilomètre a été utilisé pour mesurer les épaisseurs de nos couches minces, ainsi que la rugosité de leur surface. Pour les mesures par profilométrie, nous les avons effectuées au laboratoire LTN de Nantes qui en dispose un. La FIGURE 3.12 illustre une des mesures d'épaisseur effectuée sur une éprouvette de couche mince sur substrat composite.



FIGURE 3.12 : Estimation de l'épaisseur e d'un dépôt de couche mince conductrice sur un substrat composite au profilomètre optique.



FIGURE 3.13 : Estimation de l'épaisseur e d'un dépôt de couche mince conductrice sur un substrat composite au microscopie électronique à balayage (MEB).

En ce qui concerne l'estimation de l'épaisseur des couches minces au microscope électronique à balayage, nous l'avons réalisée au laboratoire GeM à Saint-Nazaire, comme le montre la FIGURE 3.13.

3.5 Analyse de la méthode de mesure

On sait que tout résultat de mesure est entaché d'erreurs induites par des imperfections. La fidélité d'une méthode caractérise la dispersion des résultats observés lors de mesures. Cette dispersion dépend essentiellement des conditions d'essai (répétabilité, fidélité intermédiaire ou reproductibilité) c'est-à-dire les effets du matériel, de la main-d'œuvre, du milieu, de la matière et de la méthode mise à disposition (5M) [148]. Par conséquent, l'étude de la fidélité permet de s'interroger sur la viabilité du résultat.

3.5.1 Limites du banc d'essai

L'évaluation des limites de notre banc d'essai est utilisée, d'une part, pour déterminer si les conditions expérimentales sont acceptables, d'autre part, pour nous caler sur le calibre le plus approprié par rapport à l'erreur relative. Pour cela, il nous faut évaluer les performances de notre méthode de mesure et effectuer un bilan d'incertitude dont la démarche consiste à :

- déterminer les différentes variables qui interviennent dans la mesure, les grandeurs d'influence et la fonction mathématique qui lie ces variables ;
- déterminer les composantes de l'erreur sur chacune des variables, en listant les composantes aléatoires et systématiques ;
- déterminer les incertitudes-types sur chacune des variables : incertitude de type A (statistiques), incertitude de type B (probabilistes) et éventuellement l'incertitude de type composé;
- déterminer l'incertitude de type composée sur la mesure et le facteur d'élargissement (associé à la loi supposée représenter la répartition des valeurs prises par la mesure) ;
- et enfin, déterminer l'incertitude élargie sur la mesure avec ses caractéristiques.

3.5.1.1 La fonction mathématique

Considérerons une grandeur physique Y à mesurer qui dépend de *n* autres variables X_1, \ldots, X_n à travers une fonction mathématique f définie comme suit :

$$Y = f(X_1, \dots, X_2)$$
(3.6)

De ce fait, la connaissance des incertitudes des variables physiques d'entrées $\Delta X_1, \ldots, \Delta X_n$, nous permet de déduire l'incertitude ΔX de la grandeur physique à mesurer par la relation:

$$\Delta Y = \left|\frac{\partial f(X_1, \dots, X_n)}{\partial X_1}\right| \cdot \Delta X_1 + \dots + \left|\frac{\partial f(X_1, \dots, X_n)}{\partial X_n}\right| \cdot \Delta X_n$$
(3.7)

Ainsi, dans l'application de la méthode de mesure volt-ampérimétrique, notre grandeur physique à mesurer est la conductivité électrique σ ($S \cdot m^{-1}$) et les variables physiques d'entrées sont : R (résistance électrique en Ω), L (longeur de l'échantillon en m) et S (section de passage du courant en m²). La fonction mathématique est alors définie par l'équation (3.8).

$$\sigma = f(R, L, S) = \frac{L}{R \cdot S}$$
(3.8)

3.5.1.2 Détermination des incertitudes des variables physiques d'entrées

L'incertitude est un paramètre, associée au résultat d'un mesurage, qui caractérise la dispersion des valeurs qui pourraient être raisonnablement attribuées à la grandeur que l'on cherche à mesurer. On distingue globalement deux types d'incertitude : l'incertitude de type A et l'incertitude de type B.

Incertitude de type A : on dit qu'on a une évaluation de type $A(u_A)$ sur une grandeur physique lorsque son estimation ne peut être obtenue à partir d'une analyse statistique des séries de résultats obtenues dans les conditions définies de mesurage.

À titre d'exemple, si l'on considère une série de *n* mesures x_1, \ldots, x_n de la longueur *X* (grandeur physique) d'une pièce. L'incertitude de type $A(u_A)$ sur son estimation \overline{x} est :

$$u_A(x) = \frac{s(X)}{\sqrt{n}} = \frac{1}{\sqrt{n}} \cdot \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \overline{x})}{n-1}}$$
(3.9)

avec :

$$\overline{x} = \frac{x_1 + \dots + x_n}{n}$$
 $s(X) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \overline{x})^2}{n-1}}$ (3.10)

où \overline{x} est la valeur moyenne des *n* mesures x_1, \ldots, x_n de la longueur *X* et s(X) représente l'écart-type expérimental de la mesure de *X* ou écart-type de répétabilité.

Incertitude de type B : on dit qu'on a une évaluation de type $B(u_B)$ sur une grandeur physique X lorsque son estimation ne peut être obtenue à partir d'observations répétées et évaluée par un jugement fondé sur des lois de probabilité « supposées a priori ». La détermination de la loi de l'erreur est liée généralement : aux spécifications du fabricant des instruments de mesures, aux données fournies par des certificats d'étalonnage ou autres, à l'incertitude assignée à des valeurs de référence et donnée avec ces valeurs, etc.

On distingue différents types de lois dans la littérature dont les plus utilisées sont les lois triangulaires, les lois normales et les lois rectangulaires (ou uniformes). Dès lors, à partir

.

des informations fournies par le fabricant des instruments de mesure « measurement accuracy » et de la grandeur physique mesurée X, on déduit son incertitude ΔX . L'incertitude de type *B* est alors fournie par l'équation (3.11) ci-dessous suivant la loi de probabilité.

$$\begin{cases} u_B(x) = \frac{\Delta X}{3} & \rightarrow \text{ loi normale} \\ u_B(x) = \frac{\Delta X}{\sqrt{6}} & \rightarrow \text{ loi triangulaire} \\ u_B(x) = \frac{\Delta X}{\sqrt{3}} & \rightarrow \text{ loi rectangulaire} \end{cases}$$
(3.11)

Pour conclure, l'incertitude-type u(x) retenue sur la grandeur physique X est égale à :

$$u(x) = \sqrt{u_A^2(x) + u_B^2(x)}$$
(3.12)

3.5.1.3 Évaluation de l'incertitude composée

L'incertitude-type composée u_c est l'incertitude d'un mesurage lorsque le résultat Y est obtenu à partir de *n* autres variables X_1, \ldots, X_n grâce à la fonction mathématique *f* cidessous.

$$Y = f(X_1, \dots, X_2)$$
(3.13)

Dans la mesure où la fonction f ne présente pas de non-linéarité importante, la loi de propagation des incertitudes est définie par l'équation (3.14).

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 \cdot u^2(x_i) + 2\sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n \frac{\partial f}{\partial x_i} \cdot \frac{\partial f}{\partial x_j} \cdot u(x_i, x_j)$$
(3.14)

où $u(x_i)$ est l'incertitude-type (équation (3.12)) de x_i , $u(x_i, x_j)$ la covariance entre les variables x_i et x_j .

Toutefois, cette équation (3.14) de la loi de propagation des incertitudes possède quelques cas particuliers :

1. cas où les variables d'entrées ne sont pas corrélées (indépendantes), c'est-à-dire lorsque la covariance $u(x_i, x_j)$ entre les variables x_i et x_j est nulle :

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 \cdot u^2(x_i)$$
(3.15)

2. dans le cas où Y est une somme ou une différence de variable d'entrées indépen-

dantes :

$$Y = A \cdot x_1 + B \cdot x_1$$
 Alors $u_c(y) = \sqrt{[A \cdot u(x_1)]^2 + [B \cdot u(x_2)]^2}$ (3.16)

3. dans le cas où Y est un produit ou un quotient de variables d'entrées indépendantes :

$$Y = A \cdot \frac{x_1^a \cdot x_2^b}{x_3^c} \quad \text{Alors} \quad u_c(y) = y \cdot \sqrt{\left[a \cdot \frac{u(x_1)}{x_1}\right]^2 + \left[b \cdot \frac{u(x_2)}{x_2}\right]^2 + \left[c \cdot \frac{u(x_3)}{x_3}\right]^2}$$
(3.17)

Ainsi, à partir de la fonction mathématique de la conductivité électrique définie par l'équation (3.8), l'incertitude composée de cette dernière peut s'exprimer comme suit :

$$\frac{u_c(\sigma)}{\sigma} = \sqrt{\left[\frac{u(L)}{L}\right]^2 + \left[\frac{u(R)}{R}\right]^2 + \left[\frac{u(S)}{S}\right]^2}$$
(3.18)

Toutefois, dans le cas où la grandeur Y est mesurée directement, l'incertitude composé $u_c(y)$ est égale à :

$$u_c(y) = u(y) = \sqrt{u_A^2(y) + u_B^2(y)}$$
(3.19)

3.5.1.4 Évaluation de l'incertitude élargie

Bien que l'incertitude-type composée u_c puisse convenir pour exprimer l'incertitude d'un résultat de mesure, il est pratiquement toujours nécessaire de donner une mesure de l'incertitude qui définit, autour du résultat de mesure, un intervalle à l'intérieur duquel on puisse trouver une large fraction de la distribution des valeurs qui pourraient être raison-nablement attribuées au mesurande.

On définit ainsi un intervalle de confiance de largeur $\pm U$ autour de la valeur moyenne du mesurande. De ce fait, U appelé incertitude élargie, s'obtient en multipliant l'incertitude-type composée $u_c(y)$) par un facteur d'élargissement k.

$$U = k \cdot u_c(y) \tag{3.20}$$

La détermination de *k* correspond à ce qu'on appelle en statistique la détermination d'un intervalle de confiance à un niveau de confiance *p*. Par conséquent, pour obtenir ce facteur *k*, il est nécessaire d'avoir une connaissance de la loi de probabilité de la variable représentée par le résultat de mesure. Mais, dans la pratique, on prend le plus souvent k = 2 ce qui signifie que dans les conditions décrites ci-dessus on peut penser raisonnablement que la procédure suivie a plus de 95% de chance d'aboutir à un intervalle contenant effectivement la « valeur vraie » de *Y*. Les valeurs respectives du facteur d'élargissement *k* et du niveau de confiance $p=(1-\alpha)$ sont rassemblées dans le tableau 3.1.
Facteur d'élargissement k	Niveau de confiance (1- α) en %
1	68.27
1.960	95
2	95.45
2.576	99
3	99.73

TABLE 3.1 : Valeurs usuelles du facteur d'élargissement en supposant la loi normale [149]

Cependant, ces valeurs ne sont rigoureusement valables que lorsque le nombre N de répétitions des mesures est important (typiquement $N \ge 30$). Dans la pratique, cela est rarement le cas, il faut alors utiliser **la loi de Student** que suit la variable t. De plus, il est à noter que **la loi de Student** n'est valide que si la variable aléatoire X suit une loi normale. L'incertitude élargie est dans ce cas égale à :

$$U = t_{1-\alpha}(v) \cdot u_c(y) \tag{3.21}$$

où v est le nombre de degrés de liberté qui dépend de la mesure directe d'une grandeur estimée (voir tableau 3.2), la valeur de $t_{1-\alpha}$ et le niveau de confiance (1- α) sont donnés par le tableau des valeurs du quantile de **la loi de Student** pour différents degrés de liberté *K*.

Degrés de liberté (K)	Situation de la mesure
N - 1	N Mesures répétées
N - 2	N Mesures répétées + droite d'étalonnage $Y=a\cdot X+b$
N - p	N Mesures répétées + ajustement à p paramètres

TABLE 3.2 : Degrés de liberté et niveaux de confiance

3.5.1.5 Bilan de l'évaluation de l'incertitude

Le résultat du mesurage est donné comme suit :

$$Y = y \pm U \tag{3.22}$$

La FIGURE. 3.14 donne l'erreur relative sur la résistance en fonction du calibre de courant choisi. Cela va nous permettre de nous caler sur le calibre de courant le plus approprié.

Ainsi pour un échantillon de matériau composite donné à caractériser, on se place d'abord sur un calibre donné et on lance l'acquisition pour mesurer sa résistance électrique. Puis une fois qu'on connaît l'ordre de grandeur de cette résistance électrique, on se place à nouveau sur le calibre de courant qui nous donne la meilleur exactitude de mesure.



FIGURE 3.14 : Caractérisation de l'exactitude du banc d'essai sur la mesure de la résistance électrique.

3.5.2 Illustration expérimentale de la validé du protocole de mesure

Pour illustrer la validité du protocole de mesures, une série de mesure a été effectuée sur un échantillon de matériau composite stratifié à plis UD tous orientés dans une même direction. L'objectif est d'évaluer la capacité du banc de test à mesurer la conductivité électrique transverse d'un échantillon de composite stratifié avec exactitude.



FIGURE 3.15 : Conductivité électrique transverse mesurée.

On constate bien sur la FIGURE 3.15 que le résultat de mesure de la conductivité électrique transverse obtenu avec ce protocole de mesure a une exactitude sur la conductivité de $\pm 8,45.10^{-3}$ S m⁻¹. Ce qui correspond bien à l'exactitude du calibre de courant choisi pour cette mesure (calibre 2mA).

3.6 Conclusion

Les travaux formalisés dans ce chapitre ont concerné le développement d'un banc d'essai de caractérisation de matériaux composites et de couches minces. À cet effet, nous avons mis en place un protocole d'identification de la conductivité électrique de ces matériaux. La méthode volt-ampèrimétrique, basée sur la technique des deux points, semblent la mieux adaptée à la complexité de ces matériaux composite à renfort UD. Pour la caractérisation électrique des couches minces la technique des quatre pointes a été utilisée. Ce banc de test sera utilisé dans le chapitre suivant pour valider les résultats proposés au chapitre suivant.

4

APPLICATIONS AUX COMPOSITES STRATIFIÉS À RENFORT TISSÉS

Sommaire

4.1	Introduction		
4.2	Modélisation d'un matériau composite tissé		
4.3	Morphologie du matériau composite tissé Satin 5H		
4.4	Première transition d'échelle		
4.5	Seconde transition d'échelle 121		
	4.5.1 Représentation de la géométrie du pli tissé		
	4.5.2 Résolution du problème		
	4.5.3 Résultats de la seconde transition et sensibilité		
4.6	Troisième transition d'échelle 128		
4.7	Caractérisation électrique du composite stratifié		
	4.7.1 Mesure du tenseur de conductivité électrique		
	4.7.2 Résultats expérimentaux du tenseur de conductivité 132		
4.8	Validation du modèle et discussion		
4.9	Conclusion		

4.1 Introduction

Comme déjà présenté dans le chapitre1, un matériau composite stratifié est constitué d'un empilement de plusieurs plis (ici tissé), orientés selon un ordre prédéfini par le plan de drapage. Le pli tissé est construit à partir de torons (ou mèches ou encore fils), qui se composent de plusieurs milliers de fibres. Les fils de chaîne, en anglais « warps » (parallèles à la longueur du tissu), et les fils de trame, en anglais « fill ou weft ou woof » (perpendiculaires à la longueur du tissu), s'entrecroisent entre eux selon le type d'armure de tissage considéré, introduisant ainsi une ondulation des fils. De ce fait, on trouve dans la littérature des modèles analytiques [150, 151] d'estimation du tenseur de conductivité de composite à renforts textiles 2D taffetas ou satin. Dans ces modèles, du fait de la complexité de la structure, les auteurs considèrent que les mèches imprégnées par la matrice peuvent être modélisées comme des fibres. HALPIN et al [152], ainsi que LECOINTE et al [153, 154], proposent, pour prendre en compte la complexité géométrique des composites, de décomposer le pli tissé en une somme de deux plis d'UD, par analogie à un stratifié $[0^{o}/90^{o}]$. Toutefois, ces hypothèses sont souvent source d'une mauvaise interprétation géométrique et physique par rapport à la structure réelle des composites et ne prennent pas en compte le phénomène de percolation.

Ainsi, la méthode d'homogénéisation **multi-échelle** développée au chapitre 2 est appliquée aux matériaux composites à renfort UD tissé pour prédire leur conductivité électrique effectif. Pour valider ce modèle d'homogénéisation **multi-échelle**, des mesures de conductivité électrique sont menées sur le banc d'essai volt-ampéremétrique développé au chapitre 3. À l'issue, une comparaison entre les résultats mesurés et ceux obtenus par la méthode d'homogénéisation **multi-échelle** est entreprise afin de valider le modèle.

4.2 Modélisation d'un matériau composite tissé

Le matériau composite à renfort UD que nous proposons d'étudier ici est un composite tissé SATIN 5H. De ce fait, à partir d'une observation géométrique de sa structure, nous introduisons une nouvelle échelle intermédiaire entre l'échelle de la fibre et l'échelle du pli appelé échelle du toron ou intermédiaire (INTER), comme l'illustre la FIGURE 4.1. L'introduction de cette échelle, nous permet de prendre en compte les différents niveaux d'hétérogénéité de la structure complexe de ces composites tissés. En outre ces composites tissés peuvent être considérés comme des structures périodiques à l'échelle du pli. Par conséquent, l'étude du motif périodique représentatif de sa structure est suffisante pour prédire son comportement effectif. Ce motif de tissage périodique qui représente le Volume Équivalent Représentatif (VER) sera appelé VER_B et modélisera le comportement physique effectif du matériau composite à l'échelle du pli.



FIGURE 4.1 : Démarche d'homogénéisation multi-échelle de prédiction des propriétés électriques d'un composite

La taille du VER_{*B*} est déterminée par un certain nombre de fils de chaîne et de trame qui constituent chaque motif de tissage d'armure. Á titre d'exemple, la FIGURE 4.2 illustre quelques VER_{*B*} de plis de composites tissés [155]. Dans cette étude, le renfort se présente sous la forme d'un motif SATIN 5H et la modélisation va consister à reproduire de la manière la plus réaliste possible sa géométrie. En effet, il s'agit de déterminer le VER_{*B*} du pli, dont la définition n'est pas unique (possibilité de translation dans le plan) qui par répétition périodique matérialise le renfort entier. Le VER_{*B*} du pli tissé SATIN 5H illustré sur la FIGURE 4.2 sera celui retenu et utilisé pour la suite de la modélisation.



FIGURE 4.2 : Représentation (a) 2D et (b) 3D du motif périodique ou Volume Équivalent Représentatif (VER) de composites tissés à armures taffetas et satin.

Pour ces composites à renfort tissé SATIN 5H, notre méthode d'homogénéisation **mutiéchelle** suggère d'effectuer trois transitions d'échelles par rapport à la structure complexe du composite (FIGURE 4.1). Ainsi, à travers l'usage successif de modèles prédictifs décrits dans la section2.2 du chapitre2 pour leur pertinence vis-à-vis de la description du phénomène de percolation, les différentes échelles au sein du composite pourront être prises en compte.

Première transition d'échelle : elle permet d'obtenir les propriétés électriques effectives de l'échelle intermédiaire (toron ou mèche) à partir d'une microstructure (échelle de la fibre) d'une mèche et de la connaissance des conductivités électriques de ces constituants

(fibres et matrice). À cet effet, nous considérons que les conductivités électriques équivalentes des torons (ou mèches) peuvent être évaluées, localement, avec la même procédure pour les matériaux composites à renforts unidirectionnels (UD).

Deuxième transition d'échelle : elle permet d'obtenir les propriétés électriques effectives du pli à partir des propriétés électriques effectives du toron obtenues de la première transition d'échelle.

Troisième transition d'échelle : elle permet d'obtenir les propriétés électriques effectives du composite à partir des propriétés électriques effectives du pli obtenues de la deuxième transition d'échelle.

Remarque : Par ailleurs, le nombre de transitions d'échelle va dépendre de la décomposition géométrique des niveaux d'hétérogénéité du composite à renforts UD tissé considéré.

4.3 Morphologie du matériau composite tissé Satin 5H

Notre cas d'étude porte sur un matériau composite à renforts UD tissé élaboré par SAFRAN COMPOSITES. Afin de modéliser ce matériau composite, un volume équivalent représentatif est défini (FIGURE 4.3) dont on connait les caractéristiques morphologiques et les propriétés électriques de ses constituants.



FIGURE 4.3 : Motif périodique ou Volume Équivalent Représentatif (VER_B) de composites tissés Satin 5H.

Le matériau composite est élaboré à partir de tissus pré-imprégnés d'architecture SATIN 5H, constitués de fibres de carbone de diamètre moyen de 7 μ m. Les plis sont empilés les uns au-dessus des autres et orientés tous dans la même direction en intercalant un ou plusieurs films polymères chargés de graphite de carbone entre eux, par « film stacking ». La consolidation de cet empilement a été effectuée sous une presse chauffante dans un moule « RTM (Resine Transfert Molding) » suivant un procédé de thermo-compression. La densité de fibres (285 g m⁻²) dans les mèches de chaîne et trame des plis pré-imprégnés est identique et permet d'atteindre un taux massique de 50% (données fabricant). Le taux volumique de fibres (TVF) dans le composite final mesuré par SAFRAN COMPOSITES est compris entre 39 et 40%.

Constituants	Conductivité électrique σ (en S m ⁻¹)
Polymère chargé à en graphite	confidentiel
Fibres de carbonne	$6,25.10^4$

TABLE 4.1 : Propriétés électriques des constituants du matériau composite.

Les propriétés électriques des constituants du matériau composite sont récapitulés dans la TABLE 4.1. La conductivité électrique des fibres est obtenue à partir des données fournies par le fabricant. La conductivité électrique de la matrice polymère chargée en graphite de carbone a été mesurée au laboratoire IREENA avec le banc d'essai volt-ampèremétrique développé au chapitre 3.

À cela, s'ajoute les paramètres géométriques que nous avons utilisés pour construire le volume équivalent représentatif en 3D du composite tissé. Ces paramètres géométriques fournis par le fabricant ou obtenus par mesure au MEB sur le tissu, sont résumés dans la TABLE 4.2. Toutefois, à cause du procédé de mise en œuvre et des variabilités inhérentes au procédé de tissage, une variabilité de \pm 1 ou 2 points sur le taux volumique de fibres et de 0, 1mm sur l'épaisseur sont à considérer [156].

Données	Unité	Valeur
Contexture (fabricant)	Chaines/cm x Trames/cm	7x7
Fraction volumique de fibres (fabricant)	%	50
Largeur des mèches (mesurée) : a	mm	$1,7\pm0,08$
Épaisseur mèche (fabricant) : $h_f + h_w$	mm	0, 29
Espace entre fils (mesurée) : g	mm	$0,17\pm0,008$

TABLE 4.2 : Données géométriques du tissu satin 5H.

Ainsi, une fois les caractéristiques morphologiques et les propriétés électriques de ses constituants définis, notre méthode d'homogénéisation **muti-échelle** est appliquée en effectuant les trois transitions d'échelles requises (section 4.2).

4.4 Première transition d'échelle

Elle permet d'obtenir les propriétés électriques effectives de l'échelle intermédiaire (toron ou mèche) à partir de la microstructure (échelle de la fibre) d'une mèche et de la connaissance des conductivités électriques de ses phases constitutives (fibres et matrice). De ce fait, nous considérons que les conductivités électriques équivalentes, des torons (ou mèches) peuvent être évaluées, localement, comme celles des composites à renforts unidirectionnels (UD).

À cet effet, les conductivités électriques longitudinale et transverse effectives des torons sont déterminées numériquement à l'aide du modèle développé à la section 2.4 du chapitre 2 en faisant l'hypothèse que les charges (graphite de carbone) sont contenues exclusivement dans la matrice polymère (pas de charge dans les mèches).

Pour les caractéristiques des fibres nous avons utilisés des fibres de la famille « HTA40 3K » dont les caractéristiques géométriques et physiques sont définies dans l'annexe A.2. Ces fibres ont un diamètre de 7 μ m avec une période d'ondulation spatiale de 280 μ m et une résistivité électrique intrinsèque égale à 1,6 ×10⁻⁵ Ωm. À partir de ces données morphologique et physique, les conductivités électriques dans les directions longitudinale et transverse des fibres ont pu être calculées numériquement. De ce fait, une étude de la taille du VER est nécessaire pour valider ce résultat.

Ainsi, pour les directions en \vec{y} et \vec{x} une limite de confiance de 90% est atteinte pour des dimensions de 110 μ m×110 μ m. Ces dimensions sont bien inférieures à la largeur et l'épaisseur d'un toron. Suivant la direction en \vec{z} nous avons effectué 41 tirages pour des longueurs de VER allant de 0,005 m à 0,04 m.

La FIGURE 4.4 illustre la limite de confiance à 90% obtenue par la loi de STUDENT des conductivités électriques moyennes normalisées. Nous constatons pour les cellules de dimension en \vec{z} supérieure ou égale à 0,02m, les limites de confiance à 90% sont atteintes avec une fraction volumique de fibres de 40%.

Les résultats de la modélisation du comportement électrique des mèches sont illustrés dans la TABLE 4.3.

Conductivité	Valeur	Unité
Longitudinale : σ_x	$2,50.10^{+4} \pm 0,00$	${ m S}{ m m}^{-1}$
Transverse : $\sigma_y \simeq \sigma_z$	$0,30\pm0,02$	${ m S}{ m m}^{-1}$

TABLE 4.3 : Propriétés électriques des mèches avec une fraction volumique de fibres de40%.



FIGURE 4.4 : Limites de confiance de la conductivité électrique transverse du toron.

4.5 Seconde transition d'échelle

Elle permet d'obtenir les propriétés électriques effectives d'un pli tissé à partir des propriétés électriques effectives d'un toron obtenues de la première transition d'échelle. Dès lors, la démarche retenue dans cette transition d'échelle repose sur la résolution du problème électrique sur un motif périodique représentatif (VER_{*B*}) tridimensionnel de l'architecture du matériau composite étudié.

4.5.1 Représentation de la géométrie du pli tissé

La géométrie des plis tissés repose sur une représentation tridimensionnelle de leur VER_B ou motif périodique représentatif. Néanmoins, en raison de la complexité de son architecture, il est assez difficile de modéliser avec précision sa microstructure réelle. De ce fait, en exploitant la symétrie du VER_B, on peut la décomposer en plusieurs cellules unitaires. Ces cellules unitaires sont choisies soigneusement de manière à permettre la reconstruction du VER_B lorsqu'elles vont être juxtaposées les unes par rapport aux autres. À cet effet pour des raisons de simplicité dans l'analyse du modèle géométrique, le VER est idéalisé et les sections transverses des mèches sont supposées rectangulaires.

Toutefois, pour mieux représenter la géométrie de la section transverse des torons, des formes lenticulaires [157, 158] et elliptiques [159, 160] ont été proposées dans la littérature. Or, bien que ces formes assurent une meilleure cohérence avec les géométries réelles obtenues après la mise en forme du renfort, elles sollicitent un nombre important de paramètres, limitant leur usage pour des études paramétriques. Par ailleurs, en analysant de manière approfondie la géométrie du VER_B, celui-ci peut être décomposé en cinq cellules unitaires [155] idéalisées. La FIGURE 4.5 montre le découpage géométrique d'un VER_B en cellules unitaires. Ainsi en partant des travaux de G. N. Dul'nev [161], chaque cellule unitaire peut être construite par opérations de symétrie/translation à partir de quatre types de cellules génériques illustrés par la FIGURE 4.6.



FIGURE 4.5 : Décomposition du motif périodique répétitif en cinq cellules unitaires



FIGURE 4.6 : Les quatre types de cellules génériques de la décomposition des cellules unitaires

4.5.2 Résolution du problème

Pour l'estimation des propriétés électriques effectives à l'échelle du pli, nous avons utilisé la méthode de réseau de résistances tridimensionnel, afin de s'affranchir de la lourdeur de la méthode des éléments finis par rapport à la géométrie 3D et à la finesse du maillage qui permettrait de prendre en compte les différentes niveaux d'hétérogénéité du composite. La stratégie consiste à résoudre le problème électrique sur le VER_B du pli tissé. Pour cela, nous émettons un certain nombre d'hypothèses : la différence de dimension entre les fils de chaîne et de trame est négligeable, la résistance de contact entre les fibres de différentes mèches est négligeables et la circulation du courant *I* est unidirectionnelle.

Les conductivités du pli dans les trois directions peuvent être facilement obtenues en connaissant les résistances équivalentes dans chaque directions du VER_B, ainsi que de ces dimensions. Ces résistances équivalentes du VER_B peuvent être obtenues grâce aux résistances des différentes cellules unitaires. Les FIGURES 4.7 et 4.8 illustrent les résistances électriques des cellules élémentaires connectées en série et en parallèle dans la direction de projection du courant (\overrightarrow{x}) et (\overrightarrow{z}) respectivement. Pour la direction (\overrightarrow{y}) , une procédure similaire à celle de la direction (\overrightarrow{x}) est utilisée. Ces résistances électriques sont déterminées dans l'annexe A.



FIGURE 4.7 : Réseau de résistances électriques équivalentes dans la direction (*ox*) du motif répétitif représentatif d'un pli tissé Satin 5H



FIGURE 4.8 : Réseau de résistances électriques équivalentes dans la direction (*oz*) du motif répétitif représentatif d'un pli tissé Satin 5H

Ainsi, les résistances électriques équivalentes du VER_B dans les trois directions de l'espace, peuvent être calculées comme suit :

$$R_{eq_x} = \frac{1}{5} \times \left(R_x^{(1)} + R_x^{(2)} + R_x^{(3)} + R_x^{(4)} + R_x^{(5)} \right)$$
(4.1)

$$R_{eq_y} = \frac{1}{5} \times \left(R_y^{(1)} + R_y^{(2)} + R_y^{(3)} + R_y^{(4)} + R_y^{(5)} \right)$$
(4.2)

$$\frac{1}{R_{eq_z}} = 5 \times \left(\frac{1}{R_z^{(1)}} + \frac{1}{R_z^{(2)}} + \frac{1}{R_z^{(3)}} + \frac{1}{R_z^{(4)}} + \frac{1}{R_z^{(5)}} \right)$$
(4.3)

où $R_j^{(i)}$ est la résistance équivalente de la cellule générique i (1 à 5) dans la direction j (x, y, z) de l'espace du VER.

Les résistances électriques équivalentes des cinq cellules unitaires sont obtenue en assemblant leurs différents éléments constitutifs par opérations de symétrie/translation comme l'illustre la FIGURE 4.9. De ce fait, on en-déduit la résistance électrique équivalente de chacune des cellules en x et z à partir de leurs circuits électriques.(voir FIGURE 4.10 et FIGURE 4.11).

Les résistances électriques équivalentes des cellules unitaires en \overrightarrow{y} sont obtenues en remplaçant dans la FIGURE. 4.10 x par y tout en tenant compte de l'inter-changement des indices w et f dans les équations (A.1),(A.6),(A.10) et (A.14) de l'annexe A.1.1.



FIGURE 4.9 : Schéma de reconstruction des cellules unitaires à partir des différents types d'éléments constitutifs



FIGURE 4.10 : Circuits électriques équivalents des différentes cellules unitaires en x



FIGURE 4.11 : Circuits électriques équivalents des différentes cellules unitaires en z

4.5.3 Résultats de la seconde transition et sensibilité

La TABLE 4.4 présente le résultat de l'homogénéisation du pli tissé Satin 5H. L'équilibre des mèches de trame et chaine est bien prise en compte par le modèle, en effet les conductivité dans le plan (*x*-*y*) sont identiques. De même, la forte anisotropie entre la plan (*x*-*y*) et la direction \overrightarrow{z} de l'épaisseur est bien prise en compte.

Composantes	Modèle numérique
$\sigma_x \text{ (Sm}^{-1})$	$1,06.10^{+4}$
$\sigma_y \ ({ m S}{ m m}^{-1})$	$1,06.10^{+4}$
$\sigma_z \ (\mathrm{S m^{-1}})$	44,71

TABLE 4.4 : Résultats du tenseur de conductivité électrique diagonal calculées d'un pli tissé Satin 5H Toutefois, la démarche d'homogénéisation **multi-échelle** développée pour la prédiction du tenseur de conductivité électrique du pli tissé, met en jeu un bon nombre de paramètres géométriques dont il est difficile d'avoir une vision globale et d'appréhender leur influence sur le résultat final obtenu. Ces paramètres donnés par les constructeurs ou bien mesurés en laboratoire, sont par ailleurs connus avec une certaine incertitude. Ces incertitudes peuvent être insignifiantes ou prépondérantes vis-à-vis de l'estimation du tenseur de conductivité électrique du pli tissé. De ce fait, une étude paramétrique est nécessaire, pour évaluer dans quelle mesure une erreur sur les paramètres d'entrée de notre modèle peut entraîner un écart significatif sur le résultat final et cette étude fait l'objet des paragraphes ci-dessous.

Sensibilité à la conductivité électrique de la matrice polymère chargée

Pour la conductivité électrique de la matrice polymère chargée en graphite de carbone à 20%, nous avons estimé son incertitude à $\pm 5\%$. La FIGURE 4.12 illustre que les conductivités effectives longitudinales dans le plan (x - y) sont très peu sensibles aux variations d'incertitudes de la conductivité électrique de la matrice chargée en graphite de carbone à cause des nombreux contacts électriques entre les torons. Tandis que la conductivité électrique transverse (z) c'est-à-dire à travers l'épaisseur du pli est un peu sensible aux variations d'incertitudes de cette dernière.



FIGURE 4.12 : Sensibilité des composantes du tenseur de conductivité électrique effective aux conductivités électriques de la matrice polymère chargée en graphite de carbone

Sensibilité aux grandeurs géométriques du modèle

Pour les grandeurs géométriques mesurées, largeur des mèches et espacement entre fils, nous avons des incertitudes de $\pm 8\%$. Nous constatons respectivement sur la FIGURE 4.13 et la FIGURE 4.14 que l'influence des variations d'incertitudes de la largeur des mèches et de l'espacement entre fils est très faible et quasiment nulle, sur les composantes du tenseur de conductivité électrique effective par rapport à leurs ordres de grandeur.



FIGURE 4.13 : Sensibilité des composantes du tenseur de conductivité électrique effective par rapport à la largeur des mèches



FIGURE 4.14 : Sensibilité des composantes du tenseur de conductivité électrique effective par rapport à l'espacement entre fils

4.6 Troisième transition d'échelle

Enfin, la dernière étape de ce processus d'homogénéisation permettra d'aboutir au tenseur de conductivité électrique effectif du matériau composite stratifié. En partant de l'orientation des différents plis par rapport au repère propre du composite stratifié et de leur épaisseur respective, et du tenseur de conductivité électrique d'un pli, obtenu de la deuxième transition d'échelle. Il s'agit ici d'estimer le tenseur de conductivité du composite stratifié. Par ailleurs, si les plis du composite stratifié sont équilibrés et supposés sans désorientation, alors le tenseur de conductivité électrique effective du composite est identique à celle du pli. Dans le cas contraire, il peut être déduit, analytiquement [109]. À cet effet, si nous considérons $[\sigma]_{P,i}$ comme le tenseur de conductivité électrique du *i*^{eme} pli dans son repère propre $(0, \vec{u}, \vec{v}, \vec{w})$, si θ_i est l'angle d'orientation de ce pli par rapport au référentiel commun $(0, \vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ du matériau composite stratifié, on peut alors déduire facilement son tenseur de conductivité électrique dans le référentiel commun par la relation ci-dessous :

$$[\sigma]_{P,i} = \begin{bmatrix} \sigma_{i,u} \cos^2 \theta_i + \sigma_{i,v} \sin^2 \theta_i & (\sigma_{i,v} - \sigma_{i,u}) \cos \theta_i \sin \theta_i & 0\\ (\sigma_{i,v} - \sigma_{i,u}) \cos \theta_i \sin \theta_i & \sigma_{i,v} \cos^2 \theta_i + \sigma_{i,v} \sin^2 \theta_i & 0\\ 0 & 0 & \sigma_{i,w} \end{bmatrix}$$
(4.4)

où $\sigma_{i,u}$, $\sigma_{i,v}$, $\sigma_{i,w}$ sont respectivement les conductivités électriques le long de l'axe d'orientation des fibres, transverse à l'axe d'orientation des fibres et suivant l'épaisseur e_i du i^{eme} pli.

De ce fait, en considérant le plan de drapage des N plis du matériau composite stratifié, dont les épaisseurs e_i peuvent être différentes, on déduit le tenseur de conductivité électrique effectif de ce dernier à partir de l'équation (4.5).

Toutefois, cette méthode analytique basée sur une moyenne volumique et ne prend pas en compte l'interaction des phénomènes physiques entre plis.

$$[\sigma_{eff}]_{C} = \begin{bmatrix} \frac{\sum_{i=1}^{N} \sigma_{i,xx} \cdot e_{i}}{\sum_{i=1}^{N} e_{i}} & \frac{\sum_{i=1}^{N} \sigma_{i,xy} \cdot e_{i}}{\sum_{i=1}^{N} e_{i}} & 0\\ \frac{\sum_{i=1}^{N} \sigma_{i,xy} \cdot e_{i}}{\sum_{i=1}^{N} e_{i}} & \frac{\sum_{i=1}^{N} \sigma_{i,yy} \cdot e_{i}}{\sum_{i=1}^{N} e_{i}} & 0\\ 0 & 0 & \frac{\sum_{i=1}^{N} \sigma_{i,zz} \cdot e_{i}}{\sum_{i=1}^{N} e_{i}} \end{bmatrix}$$
(4.5)

Or, lorsqu'un composite stratifié est soumis à un champ magnétique, l'interaction des phénomènes physiques entre plis devient importante. Pour simuler ces phénomènes, le tenseur de conductivité électrique d'un pli tissé est intégré dans un modèle numérique utilisant les éléments de Whitney dégénérés multicouches [113, 114], généralisés aux régions multicouches anisotropes hétérogènes [115].

4.7 Caractérisation électrique du composite stratifié

4.7.1 Mesure du tenseur de conductivité électrique

Ces essais ont pour but de déterminer le tenseur de conductivité électrique de plaques de matériaux composites stratifiés à plis tissés. La méthode volt-ampéremétrique des deux points (FIGURE 3.6) avec le protocole de mesure décrit à la section 3.4 du chapitre 3, est utilisée dans cette section pour identifier expérimentalement le tenseur de conductivité électrique diagonal du matériau composite à température ambiante.). Par ailleurs, cette méthode des deux points permet aussi d'optimiser la section de passage du courant.



PC Contrôle /Acquisition

Système installation éprouvette

FIGURE 4.15 : Photo du banc d'essai de caractérisation électrique des éprouvettes

En effet, vu la complexité de la microstructure des plaques de composites stratifiés (tissu tissé) et de leur procédé de mise en œuvre (« film stacking »), l'usage de la méthode des quatre points soulève un problème sur l'interprétation et la validation de la mesure de tension en surface des échantillons (FIGURE. 3.7). En outre, dans ce cas (méthode des quatre points) le mode de distribution du courant au sein d'un pli tissé ou entre plis dans ces composites reste un inconnu par rapport à l'estimation de la section de passage du courant.

À cet effet, nous disposons pour la mesure des conductivités électriques des échantillons de matériau composite stratifié de plis tissés (d'orientation identique) à architecture satin 5H, de dimensions 40x40x3 mm découpés par jet d'eau sur la plaque de 400x400 mm.

Pour assurer un très bon contact entre les électrodes de cuivres et les fibres de carbone, nous avons procédé à un polissage mécanique des surfaces de contacts des extrémités des échantillons pour éliminer la mince couche de résine résultant du procédé de mise en œuvre. Puis nous avons métallisé les surfaces de contacts afin de faciliter l'injection du courant électrique dans les éprouvettes.

Ainsi, nous avons injecté un courant électrique continu de faible amplitude (\sim qques mA) aux échantillons de plaques de composites pour éviter leur échauffement diffus ou localisé. Cette injection du courant est faite en Mode Delta [162] pour supprimer les effets thermoélectriques. De ce fait, pour chaque direction principale du tenseur diagonal, on mesure la résistance électrique des éprouvettes en les disposant dans le système d'installation des éprouvette par rapport l'axe de mesure comme l'illustre la FIGURE 3.8.

Toutefois, les résistances électriques totales mesurées R_m par la loi d'Ohm avec la méthode des deux points sont égales à une somme de résistances : la résistance intrinsèque de l'échantillon R_{ech} + la résistance parasite de contact R_c qui dépend globalement du matériau constitutif des électrodes.

$$R_m = R_{ech} + R_c = \frac{1}{\sigma} \cdot \frac{1}{S} \cdot \mathbf{L} + R_c$$
(4.6)

où σ est la conductivité électrique de l'éprouvette ; *S* et *L* sont, respectivement, la section de passage du courant et la longueur de l'éprouvette .

À partir de l'équation (4.6), on constate que la résistance totale mesurée R_m peut se mettre sous forme d'une relation linéaire par rapport à la longueur L de l'éprouvette. En effet, en traçant les valeurs de R_m en fonction de la longueur L dans un repère cartésien, on doit normalement obtenir une ligne droite dans l'hypothèse où R_c et σ ne dépendent pas de L. De ce fait, l'identification de cette résistante de contact R_c est faite à l'intersection de la droite d'équation (4.6) avec l'axe des ordonnées, en prenant plusieurs éprouvettes de largeur et d'épaisseur identiques mais qui ont des longueurs L différentes. On en déduit ainsi la résistance de l'échantillon par l'équation (4.7) ci dessous :

$$R_{ech} = R_m - R_c \tag{4.7}$$

Par conséquent, les composantes du tenseur diagonal de conductivité électrique homogénéisé d'une éprouvette de longueur *L*, de largeur *l* et d'épaisseur *e* sont obtenues à partir des équations (4.8), (4.9) et (4.10) ci-dessous, en imposant un courant *I* à circuler respectivement dans les directions principales du référentiel composite $(0, \vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$.

$$\sigma_{xx} = \frac{1}{R_{xx_{ech}}} \times \frac{L}{e \cdot l} \tag{4.8}$$

$$\sigma_{yy} = \frac{1}{R_{yy_{ech}}} \times \frac{l}{e \cdot L}$$
(4.9)

$$\sigma_{zz} = \frac{1}{R_{zz_{ech}}} \times \frac{e}{L \cdot l}$$
(4.10)

Dans le cadre de ces travaux, pour identifier la résistance de contact suivant l'axe \vec{x} , trois éprouvettes de largeur *l*et d'épaisseur *e* identique mais qui ont des longueur *L* différentes ont été choisies. La FIGURE 4.16 illustre l'évolution de la résistance totale mesure en fonction de la longueur de l'échantillon qui permet d'en-déduire la valeur de la résistance de contact. Par ailleurs, par rapport à l'architecture du composite satin 5H, cette résistance de contact est équivalente à celle suivant l'axe Y de l'éprouvette.



FIGURE 4.16 : Résistance électrique totale mesurée de 3 échantillons avec la même largeur, la même épaisseur et différentes longueurs

D'autre part pour identifier la résistance de contact suivant l'axe \vec{z} (épaisseur), trois échantillons de même épaisseur mais de facteurs de forme e/S ($S = L \times l$ différents ont été choisies. La FIGURE 4.17 montre l'évolution de la résistance totale mesure en fonction du facteur de forme e/S de l'échantillon qui permet d'en déduire la valeur de la résistance de contact.



FIGURE 4.17 : Résistance électrique totale mesurée de 3 échantillons dans le sens de l'épaisseur, en fonction de leur facteur de forme e/S

4.7.2 Résultats expérimentaux du tenseur de conductivité

Les résultats expérimentaux obtenus des valeurs des composantes du tenseur diagonal de conductivité électrique homogénéisé sont présentées sur la TABLE 4.5 ci-dessous. Nous remarquons que les valeurs des composantes du tenseur diagonal de conductivité électrique sont légèrement dispersées autour de leur moyenne. Néanmoins, ces valeurs semblent être en accord par rapport à l'architecture du matériau composite étudié c'est-à-dire isotrope (même ordre de grandeur) dans le plan x - y avec une forte anisotropie suivant l'épaisseur (l'axe transverse z). Nous rappelons que les mesures ont été effectuées sur des éprouvettes issues d'une plaque de matériau composite stratifié à plis tissés satin 5H orientés tous dans une même direction. Les écarts-types qui reflètent la dispersion des résultats de mesure peuvent être associés aux différences de surface de contact des échantillons avec les électrodes, à l'hétérogénéité microscopique au sein des éprouvettes de même nature, etc.

Composantes	Valeurs	Écart-types
$\sigma_X \text{ (Sm}^{-1})$	$1, 13.10^{+4}$	$\pm 5,69.10^{+2}$
$\sigma_Y (\mathrm{S m^{-1}})$	$1,07.10^{+4}$	$\pm 5,47.10^{+2}$
$\sigma_Z \text{ (Sm}^{-1}\text{)}$	40, 33	$\pm 5,02$

TABLE 4.5 : Composantes moyennes mesurées du tenseur diagonal de conductivité électrique des échantillons de plaque de composite stratifié à plis tissés

4.8 Validation du modèle et discussion

Pour valider le modèle d'estimation du tenseur diagonal de conductivité électrique développé dans ce travail de thèse, les résultats du modèle sont comparés aux résultats expérimentaux obtenus durant l'étude. La TABLE 4.6 illustre les valeurs des composantes du tenseur de conductivité obtenues par modèle et par les essais expérimentaux. Nous pouvons constater que l'isotropie et l'anisotropie, respectivement, dans le plan x - y et dans l'axe transverse z (épaisseur) du composite, est bien prise en compte par notre modèle.

Composantes	Modèle num.	Mesures experimentales	Diff (%)
$\sigma_x \text{ (Sm}^{-1})$	$1,06.10^{+4}$	$1, 13.10^{+4}$	$\pm 6, 19$
$\sigma_y (\mathrm{Sm^{-1}})$	$1,06.10^{+4}$	$1,07.10^{+4}$	$\pm 1,0$
$\sigma_z \text{ (Sm}^{-1}\text{)}$	44,71	40,33	$\pm 9,79$

TABLE 4.6 : Comparaison des composantes du tenseur de conductivité électrique diagonal calculées et mesurées pour un matériau composite stratifié à plis tissés

Nous constatons que les prédictions du modèle sur les valeurs des composantes du tenseur diagonal de conductivité entrent dans l'intervalle de confiance du modèle par rapport aux valeurs des conductivités moyennes du plan x - y et de la conductivité transverse (l'axe z) du matériau composite stratifié à plis tissés SATIN 5H.

Les écarts que nous observons entre les valeurs numériques et expérimentales des composantes du tenseur de conductivité peuvent s'expliquer par plusieurs raisons. D'une part, nous avons l'effet de la porosité et de l'injection des charges de graphite de carbone dans les mèches lors de l'imprégnation de ces derniers qui ne sont pas prises en compte dans le modèle de percolation. D'autre part, nous avons les hypothèses simplificatrices du modèle, comme par exemple la section des mèches rectangulaires, au lieu de paraboliques ou lenticulaires plus proches de la réalité. Enfin, nous avons le procédé de fabrication de ces composites qui peut affecter de manière non négligeable les propriétés électriques du matériau composite final.

4.9 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons utilisé le modèle d'homogénéisation multi-échelle avec une prise en compte du phénomène de percolation développé au chapitre 2 pour estimer le tenseur de conductivité électrique d'un matériau composite stratifié à plis tissés SATIN 5H, orientés tous dans une même direction. La FIGURE 4.18 présente les différentes étapes de cette méthode d'homogénéisation multi-échelle des matériaux composites stratifiés à renforts tissés. De même, nous avons aussi caractérisé expérimentalement des échantillons d'un matériau composite stratifié de même nature avec le banc d'essai illustré au chapitre 3. Les résultats du modèle développé sont cependant très corrects et permettent d'estimer de façon satisfaisante les valeurs des composantes du tenseur diagonal de conductivité électrique des matériaux composites stratifiés utilisés dans notre travail de thèse. Ce travail de modélisation nous aide en outre à mieux appréhender le mécanisme du comportement électrique de ces matériaux composites par rapport à la complexité de leur architecture. Ce modèle développé est capable de modéliser le tenseur de conductivité électrique de matériaux composites à renforts tissés bidimensionnels (les taffetas, les sergés, par exemple) à partir de quatre cellules génériques qui reconstruisent les cellules élémentaires du motif périodique (VER_B) par des opérations de translation et de rotation.



FIGURE 4.18 : Les différentes étapes de la modélisation multi-échelle des matériaux composites à renfort tissé

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Conclusion générale

Les matériaux composites thermoplastiques s'imposent de nos jours de plus en plus par rapport aux matériaux métalliques traditionnels dans de nombreux secteurs industriels du fait de leurs très bonnes propriétés mécaniques en particulier. Toutefois, les faibles conductivités électriques et thermiques de ces matériaux composites freinent leurs usages sur certaines composants industriels (aéronautique, par exemple). De ce fait, il y a besoin d'innovation scientifique et technologique pour concevoir un matériau composite thermoplastique multi-fonctionnel du point de vue électrique, thermique et mécanique pour répondre au cahier de charges des industriels. Ainsi, avant toute utilisation de ces matériaux composites, il est essentiel de connaître leurs propriétés physiques au préalable. La modélisation et l'identification de ces propriétés se heurtent à la nature très complexe de ces matériaux composites.

Dans ces travaux de thèse, on s'est consacré à la modélisation et à l'identification des propriétés électriques (conductivités électriques) de matériaux composites thermoplastiques multi-fonctionnels. Pour lever un certain nombre de verrous auxquels se heurtent la modélisation des propriétés effectives, nous avons fait appel à une approche d'homogénéisation **multi-échelle** qui prend en compte les différents niveaux d'hétérogénéités et le phénomène de **percolation** de ces composites. En outre, en vue d'identifier expérimentalement le tenseur de conductivité électrique de ces matériaux composites nous avons développé un banc d'essai volt-ampéremétrique adapté à l'architecture de la microstructure de ces matériaux composites complexes. Ce banc nous a permis aussi de caractériser les différents échantillons issus de nos partenaires industrielles du projet FUI ACCEA (Amélioration des Conductivités des Composites pour Équipements Aéronautiques), afin d'étudier l'impact des différentes structures de charges, de la nature de matrice polymère, des procédés de mise en œuvre..., sur les propriétés électriques finales des matériaux composites obtenus. Ainsi, le premier chapitre a été consacré à un état de l'art sur les matériaux composites, en particulier, sur leurs caractéristiques principales et mécanismes de conduction électrique. Ce chapitre a également permis de faire un état de l'art sur les outils de modélisations et de caractérisations électriques des matériaux composites.

Le deuxième chapitre a présenté quant à lui la démarche d'homogénéisation **multi-échelle** des matériaux composites à renforts unidirectionnels avec prise en compte de la percolation. Nous avons pu mettre en évidence que dans ces composites à renforts unidirectionnels la conductivité électrique longitudinale (parallèle) à la direction des fibres dépend principalement de la résistivité électrique intrinsèque et de la fraction volumique des fibres tandis que la conductivité électrique transverse (perpendiculaire) à la direction des fibres dépend des contacts électriques entre fibres voisines le long de l'axe des fibres (dû à l'ondulation, des alignements des fibres, etc.) et de la fraction volumique de fibres. Une étude comparative entre différents modèles analytiques d'estimation de la conductivité électrique transverse des matériaux composites à renforts unidirectionnels que l'on retrouve dans la littérature et notre modèle numérique a permis de mettre en évidence le fait que ces modèles analytiques ne prennent pas en compte le phénomène de **percolation**.

Le troisième chapitre a été consacré au développement du banc d'essai voltampéremétrique utilisé pour la caractérisation des différentes éprouvettes de matériaux composites du projet FUI ACCEA. Une méthode volt-ampèrimétrique non destructive adaptée à l'architecture de nos échantillons et un protocole de mesure ont été mis en place. En outre, les processus de mise en œuvre des plaques de composites stratifiée ont été explicités dans ce chapitre afin de pouvoir prendre en compte certains aspects du procédé de fabrication (Pression, Force, etc.) dans notre modèle numérique.

Le quatrième et dernière chapitre est consacré à l'application de l'approche d'homogénéisation **multi-échelle** illustré au chapitre 2 appliqué à un composite stratifié à plis tissé et à sa caractérisation électrique avec le banc d'essai développé au chapitre 3. La confrontation entre les résultats expérimentaux et ceux de notre modèle de prédiction du tenseur de conductivité électrique homogénéisé montre un léger écart entre les valeurs calculées et mesurées. Cet écart relativement faible est principalement dû aux hypothèses simplificatrices émises sur notre modèle par rapport au matériau réel caractérisé expérimentalement (défauts de fabrication, porosité...).

Perspectives

Les travaux de thèse présentés dans ce mémoire ouvrent de nouvelles voies de recherche :

- Il serait intéressant de faire évoluer le modèle numérique de film polymère dopé en particules ou en nano-particules qui permettra d'optimiser leurs fonctionnalités « électrique », « thermique » et « mécanique » par rapport au choix de leurs composants constitutifs, leurs formes, leurs propriétés physiques, coût.... Ce modèle devra à cet effet prendre en compte des phénomènes d'échelles, de non linéarités, de percolation, d'anisotropie, l'impact des procédés de fabrication sur les propriétés physiques locales, etc.
- Une autre perspective d'amélioration serait la prise en compte des capacités électriques et pertes diélectriques entre fibres voisines dans le modèle numérique. Cela permettra de déduire leur tenseur de permittivité complexe à partir de leur impédance et d'en déduire leur comportement électromagnétique pour les faibles taux de remplissage et hautes fréquences (efficacité de blindage électromagnétique par exemple).
- La méthodologie proposée dans cette thèse pourra être appliquée à d'autres architectures complexes des matériaux composites (taffetas, sergé, etc.) et également à certains matériaux du génie électrique (poudre de fer SMC, bobinage machine, empilement de tôles,...).
- Par ailleurs, une étude sur l'impact du vieillissement de ces matériaux composites multi-fonctionnels sur leurs propriétés physiques pourra également être envisagée.
- Le banc d'essai volt-ampéremétrique développé pourra être adapté à la caractérisation des propriétés électriques en fonction de la température ou encore de la fréquence.

Bibliographie

- [1] Hexcel, "Investor presentation," http//tinyurl.com/b7zsp9 (visité le 16/10/2015).
 Cf.p. 10, p. 10. 5, 13
- [2] G. Wasselynck, Etude des interactions entre les ondes électromagnétiques de fréquences moyennes et les matériaux composites. Application à l'assemblage par induction de ces matériaux. PhD thesis, Université Nantes, France, 2011. 5, 22, 25, 69, 87, 98
- [3] L. Flandin, A. Hiltner, and E. Baer, "Interrelationships between electrical and mechanical properties of a carbon black-filled ethylene-octene elastomer," *Polymer* (*Guildf*)., vol. 42, no. 2, pp. 827–838, 2001. 22
- [4] M. J. Biercuk, M. C. Llaguno, M. Radosavljevic, J. K. Hyun, A. T. Johnson, and J. E. Fischer, "Carbon nanotube composites for thermal management," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 80, no. 15, pp. 2767–2769, 2002. 22, 30
- [5] Z. Ounaies, C. Park, K. E. Wise, E. J. Siochi, and J. S. Harrison, "Electrical properties of single wall carbon nanotube reinforced polyimide composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 63, no. 11, pp. 1637–1646, 2003. 22
- [6] B. Kim, J. Lee, and I. Yu, "Electrical properties of single-wall carbon nanotube and epoxy composites," *J. Appl. Phys.*, vol. 94, no. 10, pp. 6724–6728, 2003. 22
- [7] Y. A. Barnakov, B. L. Scott, V. Golub, L. Kelly, V. Reddy, and K. L. Stokes, "Spectral dependence of Faraday rotation in magnetite-polymer nanocomposites," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 65, no. 5, pp. 1005–1010, 2004. 22
- [8] D. Trichet, Contribution à la modélisation, à la conception et au développement du chauffage par induction des matériaux composites. PhD thesis, Université Nantes, France, 2000. 24, 67
- [9] B. N. Cox and G. Flanagan, "Handbook of Analytical Methods for Textile Composites," *Work*, vol. 4750, no. March, 1997. 24

- [10] S.-H. Jang, Y.-L. Park, and H. Yin, "Influence of Coalescence on the Anisotropic Mechanical and Electrical Properties of Nickel," *Materials (Basel).*, vol. 9, no. 4, p. 239, 2016. 24
- [11] P. Parneix et D. Lucas, "Les matériaux composites en construction navale militaire," *Tech. l'ingénieur*, 2000. 25
- [12] S. Gaston, "Les composites dans tous leurs états," *Technologie*, no. 165, pp. 8–14, 2010. 25
- [13] S. Bensaid, Contribution à la caractérisation et à la modélisation électromagnétique et thermique des matériaux composites anisotropes. PhD thesis, Université de Nantes, France, 2006. 25, 35
- [14] L. Berreur, B. de Maillard, and S. Nösperger, "L'industrie française des matériaux composites," tech. rep., France, 2001. 25
- [15] Y. Song, Evaluation de l'apport simultané des coutures sur la perméabilité des préformes cousues et sur les performances mécaniques des structures composites cousues.
 PhD thesis, Université de Technologie de Compiègne, France, 2015. 5, 26
- [16] Y. Li, Modélisation des phénomènes électromagnétiques caractérisant des structures composites complexes. PhD thesis, Université de Nantes, France, 2012. 27
- [17] J. Qiu, C. Zhang, B. Wang, and R. Liang, "Carbon nanotube integrated multifunctional multiscale composites," *Nanotechnology*, vol. 18, p. 275708, jul 2007. 29, 30
- [18] Hexcel, "HexTow AS4 carbon fiber product data," http://www.hexcel.com/ Resour.30
- [19] X. Zhang, S. Fujiwara, and M. Fujii, "Measurements of thermal conductivity and electrical conductivity of a single carbon fiber," *Int. J. Thermophys.*, vol. 21, no. 4, pp. 965–980, 2000. 30
- [20] S. Wen and D. Chung, "Effects of carbon black on the thermal, mechanical and electrical properties of pitch-matrix composites," *Carbon N. Y.*, vol. 42, no. 12-13, pp. 2393–2397, 2004. 30
- [21] F. H. Gojny and K. Schulte, "Functionalisation effect on the thermo-mechanical behaviour of multi-wall carbon nanotube/epoxy-composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 64, no. 15 SPEC. ISS., pp. 2303–2308, 2004. 30

- [22] A. Godara, L. Mezzo, F. Luizi, A. Warrier, S. V. Lomov, A. W. van Vuure, L. Gorbatikh,
 P. Moldenaers, and I. Verpoest, "Influence of carbon nanotube reinforcement on the processing and the mechanical behaviour of carbon fiber/epoxy composites," *Carbon N. Y.*, vol. 47, no. 12, pp. 2914–2923, 2009. 30
- [23] C. A. Martin, J. K. W. Sandler, M. S. P. Shaffer, M. K. Schwarz, W. Bauhofer, K. Schulte, and A. H. Windle, "Formation of percolating networks in multi-wall carbon-nanotube-epoxy composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 64, no. 15 SPEC. ISS., pp. 2309–2316, 2004. 30
- [24] M. Antunes and J. I. Velasco, "Multifunctional polymer foams with carbon nanoparticles," 2014. 30
- [25] Q. Zhang, H. Jin, X. Wang, and X. Jing, "Morphology of conductive blend fibers of polyaniline and polyamide-11," *Synth. Met.*, vol. 123, no. 3, pp. 481–485, 2001. 5, 31
- [26] G. W. Ehrenstein, *Polymeric Materials : Structure, Properties, Applications*. Hanser Publications, 2001. 31, 95
- [27] M. H. Al-Saleh and U. Sundararaj, "A review of vapor grown carbon nanofiber/polymer conductive composites," *Carbon N. Y.*, vol. 47, no. 1, pp. 2–22, 2009.
 31
- [28] W. Bauhofer and J. Z. Kovacs, "A review and analysis of electrical percolation in carbon nanotube polymer composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 69, no. 10, pp. 1486– 1498, 2009. 31
- [29] Q. Yuan and D. Wu, "Low percolation threshold and high conductivity in carbon black filled polyethylene and polypropylene composites," *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 115, no. 6, pp. 3527–3534, 2010. 31
- [30] C. Li, E. T. Thostenson, and T.-W. Chou, "Effect of nanotube waviness on the electrical conductivity of carbon nanotube-based composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 68, no. 6, pp. 1445–1452, 2008. 5, 31, 32
- [31] "Norme ISO 13322-1 (2004) : Particle Size Analysis, Image Analysis Methods Static Image Analysis Methods," 2004. 31
- [32] M. Gerl and J.-P. Issi, *Physique des matériaux*. Lausanne [Paris] Presses polytechniques et universitaires romandes cop, 8 ed., 1997. 32
- [33] D. M. Bigg, "Conductive Polymeric Compositions," Polym. Eng. Sci., vol. 17, no. i, pp. 842–847, 1977. 32, 40

- [34] B. Krause, P. Pötschke, and L. Häußler, "Influence of small scale melt mixing conditions on electrical resistivity of carbon nanotube-polyamide composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 69, pp. 1505–1515, aug 2009. 32
- [35] Z. Spitalsky, D. Tasis, K. Papagelis, and C. Galiotis, "Carbon nanotube-polymer composites : Chemistry, processing, mechanical and electrical properties," 2010. 32
- [36] Z. Han and A. Fina, "Thermal conductivity of carbon nanotubes and their polymer nanocomposites : A review," *Prog. Polym. Sci.*, vol. 36, no. 7, pp. 914–944, 2011.
 32
- [37] R. Schueler, S. Joshi, and K. Schulte, "Conductivity of CFRP as a tool for health and usage monitoring," *Smart* ..., 1997. 32
- [38] C. Thiagarajan, I. M. Sturland, D. L. Tunnicliffe, and P. E. Irving, "Electrical potential techniques for damage sensing in composite structures," *Proc. SPIE 2361, Second Eur. Conf. Smart Struct. Mater.* 128, 1994. 32
- [39] W. Z. Li, D. Z. Wang, S. X. Yang, J. G. Wen, and Z. F. Ren, "Controlled growth of carbon nanotubes on graphite foil by chemical vapor deposition," *Chem. Phys. Lett.*, vol. 335, no. 3-4, pp. 141–149, 2001. 32
- [40] H. Qian, A. Bismarck, E. S. Greenhalgh, and M. S. Shaffer, "Carbon nanotube grafted carbon fibres : A study of wetting and fibre fragmentation," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 41, no. 9, pp. 1107–1114, 2010. 32
- [41] H. Qian, A. Bismarck, E. S. Greenhalgh, and M. S. Shaffer, "Carbon nanotube grafted silica fibres : Characterising the interface at the single fibre level," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 70, no. 2, pp. 393–399, 2010. 32
- [42] E. J. Garcia, B. L. Wardle, A. John Hart, and N. Yamamoto, "Fabrication and multifunctional properties of a hybrid laminate with aligned carbon nanotubes grown In Situ," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 68, no. 9, pp. 2034–2041, 2008. 32
- [43] K. Kyoung Ju, L. Jeong Min, Y. Ji Ho, and Y. Woong-Ryeol, "Carbon nanotube grafted carbon fibers : optimum process," in *ICCM17, 17th Int. Conf. Compos. Mater.*, (Edinburgh, UK), 2009. 5, 32, 33
- [44] R. Guzman de Villoria, P. Hallander, L. Ydrefors, P. Nordin, and B. Wardle, "Inplane strength enhancement of laminated composites via aligned carbon nanotube interlaminar reinforcement," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 133, pp. 33–39, 2016. 32
- [45] E. J. Garcia, B. L. Wardle, and A. John Hart, "Joining prepreg composite interfaces with aligned carbon nanotubes." 2008. 32

- [46] E. J. Garcia, B. L. Wardle, R. G. DeVilloria, S. Wicks, K. Ishiguro, Namiko Yamamoto, and A. J. Hart, "Aligned Carbon Nanotube Reinforcement of Advanced Composite Ply Interfaces," in *Proc. 49th AIAA/ASME/ASCE/AHS/ASC Struct. Struct. Dyn. Mater. Conf.*, (Schaumburg, IL, USA), pp. 7–10, 2008. 5, 32, 33
- [47] Matthieu Grésil, Contribution à l'étude d'un contrôle de santé intégré associé à une protection électromagnétique pour les matériaux composites. PhD thesis, Ecole Normale Supérieur de CACHAN, France, 2009. 33
- [48] M. Chauvin and B. Lascoup, "Contribution à la conductivité thermique d'un matériau composite," in AMAC. 17èmes Journées Natl. sur les Compos., (Poitiers-Futuroscope, France), p. 82, 2011. 33
- [49] D. McGeorge, "A strong basis for large scale application of composite structures in naval ships," tech. rep., EUCLID RTP3. 21, Det Norske Veritas, Oslo, Norway, 2004. 34
- [50] M. F. D. Paola, Modélisation multi-échelles du comportement thermo-élastique de composites à particules sphériques. PhD thesis, Ecole Centrale de Paris, 2010. 5, 36
- [51] Z. Hashin and S. Shtrikman, "A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials," *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 11, no. 2, pp. 127– 140, 1963. 39
- [52] M. Weber and M. R. Kamal, "Estimation of the volume resistivity of electrically conductive composites," *Polym. Compos.*, vol. 18, no. 6, pp. 711–725, 1997. 39
- [53] F. Lux, "Models proposed to explain the electrical conductivity of mixtures made of conductive and insulating materials," *J. Mater. Sci.*, vol. 28, no. 2, pp. 285–301, 1993. 39
- [54] J. Eshelby, "The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion and related problems," *Proceeding R. Soc. A 421*, vol. 241, pp. 376–396, 1957. 39
- [55] L. E. Nielsen, "The Thermal and Electrical Conductivity of Two-Phase Systems," *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, vol. 13, no. 1, pp. 17–20, 1974. 39, 40
- [56] R. McCullough, "Generalized combining rules for predicting transport properties of composite materials," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 22, pp. 3–21, jan 1985. 40
- [57] M. A. Berger and R. McCullough, "Characterization and analysis of the electrical properties of a metal-filled polymer," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 22, pp. 81–106, jan 1985. 41

- [58] D. S. McLachlan, M. Blaszkiewicz, and R. E. Newnham, "Electrical Resistivity of Composites," J. Am. Ceram. Soc., vol. 73, no. 8, pp. 2187–2203, 1990. 41, 42
- [59] D. A. G. Bruggeman, "Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen. I. Dielektrizitätskonstanten und Leitfähigkeiten der Mischkörper aus isotropen Substanzen," Ann. Phys., vol. 416, no. 7, pp. 969–664, 1935. 41
- [60] M. T. et N. Ueda, "Prediction of the in-plane electrical conductivity of a misoriented short fiber composite : fiber percolation model versus effective medium theory," *J. Eng. Mater. Technol.*, vol. 109, no. 3, pp. 252—-256, 1987. 41, 42
- [61] S. Orlowska, Conception et prédiction des caractéristiques diélectriques des matériaux composites à deux et trois phases par la modélisation et validation expérimentale. Thèse de doctorat à l'ecole centrale de lyon, france, Génie Electrique, 2003. 42
- [62] C. Pecharroman and J. E. Iglesias, "Effictive dielectric properties of packed mixtures of insulator particles," *Phys. Rev. B*, vol. 49, no. 11, pp. 7137–7147, 1994. 42
- [63] V. Bakaev, A. Snarskii, and M. Shamonin, "The effective magnetic permeability of a two-phase fibred ferromagnetic composite," *Tech. Phys.*, vol. 46, no. 12, 2001. 42
- [64] H. Waki, H. Igarashi, and T. Honma, "Estimation of effective permeability of magnetic composite materials," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 41, no. 5, pp. 1520–1523, 2005.
 42
- [65] L. Daniel, Corcolle, and Romain, "A Note on the Effective Magnetic Permeability of Polycrystals," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 43, no. 7, pp. 3153 – 3158, 2007. 42
- [66] D. Rialet, A. Sharaiha, A.-C. Tarot, C. Delaveaud, and B. Viala, "Estimation of the effective permeability of stacking dispersive conductor magnetic layers," in *EuCAP* 2010 - 4th Eur. Conf. Antennas Propag., 2010. 42
- [67] G. E. Pike and C. H. Seager, "Percolation and conductivity : A computer study II," *Phys. Rev. B*, vol. 10, no. 4, pp. 1435–1446, 1974. 43
- [68] D. Stauffer and a. Aharony, "Introduction to Percolation Theory," *Computer (Long. Beach. Calif).*, vol. 1, no. 4, p. 192, 1994. 43
- [69] S. Kirkpatrick, "Percolation and Conduction," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 45, no. 4, pp. 574–588, 1973. 43
- [70] A. B. Oskouyi, U. Sundararaj, and P. Mertiny, "Tunneling Conductivity and Piezoresistivity of Composites Containing Randomly Dispersed Conductive Nano-Platelets," *Materials (Basel).*, vol. 7, pp. 2501–2521, 2014. 44
- [71] M. Mohiuddin and S. V. Hoa, "Estimation of contact resistance and its effect on electrical conductivity of CNT/PEEK composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 79, no. February 2016, pp. 42–48, 2013. 44
- [72] M. Jouni, Nouvelles architectures de nano-systèmes polymères conducteurs à base de mélanges de nanocharges conductrices. PhD thesis, INSA Lyon, France, 2013. 44
- [73] R. Payerne, Structure et proprietes electroniques a différentes échelles de systèmes modèles de polymeres conducteurs et semi-conducteurs. PhD thesis, Université Joseph FOURIER - Grenoble I, France, 2004. 44
- [74] Z. Ounaies, "Electrical properties of single wall carbon nanotube reinforced polyimide composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 63, no. 11, pp. 1637–1646, 2003.
 44
- [75] N. F. Mott, "Conduction in non-crystalline materials-03-Localized States in a Pseudogap and Near Extremities of Conduction and Valence Bands," *Philos. Mag.*, vol. 19, no. 160, pp. 835–852, 1969. 44
- [76] J. P. Straley, "Position-space renormalisation method and the exponent theory of random conductors," *J. Phys. C Solid State Phys.*, vol. 12, p. 3711, 1979. 44
- [77] J. P. Straley, "Critical phenomena in resistor networks," J. Phys. C Solid State Phys., vol. 9, p. 783, 1976. 44
- [78] M. Ayatollahi, S. Shadlou, M. Shokrieh, and M. Chitsazzadeh, "Effect of multiwalled carbon nanotube aspect ratio on mechanical and electrical properties of epoxy-based nanocomposites," *Polym. Test.*, vol. 30, pp. 548–556, aug 2011. 44
- [79] A. Boudenne, L. Ibos, M. Fois, J. Majesté, and E. Géhin, "Electrical and thermal behavior of polypropylene filled with copper particles," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 36, pp. 1545–1554, nov 2005. 44
- [80] C. Argento and D. Bouvard, "Modeling the effective thermal conductivity of random packing of spheres through densification," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 39, no. 7, pp. 1343–1350, 1996. 45
- [81] R. B. Barello and M. Lévesque, "Comparison between the relaxation spectra obtained from homogenization models and finite elements simulation for the same composite," *Int. J. Solids Struct.*, vol. 45, no. 3-4, pp. 850–867, 2008. 46
- [82] M. D. Rintoul and S. Torquato, "Reconstruction of the Structure of Dispersions," J. Colloid Interface Sci., vol. 186, no. 2, pp. 467–476, 1997. 46

- [83] J. Segurado and J. Llorca, "A numerical approximation to the elastic properties of sphere-reinforced composites," *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 50, no. 10, pp. 2107–2121, 2002. 46
- [84] S. Kari, H. Berger, R. Rodriguez-Ramos, and U. Gabbert, "Computational evaluation of effective material properties of composites reinforced by randomly distributed spherical particles," *Compos. Struct.*, vol. 77, no. 2, pp. 223–231, 2007. 46
- [85] B. D. Lubachevsky and F. H. Stillinger, "Geometric properties of random disk packings," J. Stat. Phys., vol. 60, no. 5-6, pp. 561–583, 1990. 46
- [86] B. D. Lubachevsky, F. H. Stillinger, and E. N. Pinson, "Disks vs. spheres : Contrasting properties of random packings," J. Stat. Phys., vol. 64, pp. 501–524, 1991. 46
- [87] J. M. Goyhénèche and a. Cosculluela, "A multiscale model for the effective thermal conductivity tensor of a stratified composite material," *Int. J. Thermophys.*, vol. 26, no. 1, pp. 191–202, 2005. 47
- [88] C. L. Holloway, M. S. Sarto, and M. Johansson, "Analyzing carbon-fiber composite materials with equivalent-layer models," *IEEE Trans. Electromagn. Compat.*, vol. 47, no. 4, pp. 833–844, 2005. 47, 62
- [89] A. Dasgupta, R. K. Agarwal, and S. M. Bhandarkar, "Three-dimensional modeling of woven-fabric composites for effective thermo-mechanical and thermal properties," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 56, no. 3, pp. 209–223, 1996. 47
- [90] C. Cyr and P. Viarouge, "Methodology to study the influence of the microscopic structure of soft magnetic composites on their global magnetization curve," ..., *IEEE Trans.*, 2009. 47
- [91] C. Cyr, Modélisation et caractérisation des matériaux magnétiques composites doux utilisés dans les machines électriques. PhD thesis, Co-tutelle Université Laval du Quebec et Ecole National Supérieur d'Arts et Métiers de Lille France, 2007. 47
- [92] M. Faessel, C. Delisée, F. Bos, and P. Castéra, "3D Modelling of random cellulosic fibrous networks based on X-ray tomography and image analysis," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 65, pp. 1931–1940, oct 2005. 47
- [93] J. Lux, A. Ahmadi, C. Gobbé, and C. Delisée, "Macroscopic thermal properties of real fibrous materials : Volume averaging method and 3D image analysis," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 49, pp. 1958–1973, jun 2006. 47
- [94] O. Coindreau, Etude 3D de préformes fibreuses : interaction entre phénomènes physicochimiques et géométrie. PhD thesis, Université de Bordeaux, France, 2003. 5, 48

- [95] G. Dyos, *The Handbook of Electrical Resistivity The Handbook of Electrical Resistivity*. The Institution of Engineering and Technology, 2012. 49
- [96] F. Ehrburger-Dolle, "Les méthodes de mesures de la résistivités volumiques et super-ficielles en courant alternatif," *Rev. Phys. Appliquée*, vol. 7, pp. 139 150, 1972.
 49, 57, 93
- [97] B. Roucaries, *Contributions au contrôle non destructif des composites carbones*. PhD thesis, Université de Toulouse (INP Toulouse), France, 2009. 5, 50
- [98] C. Zorni, Contrôle non destructif par courants de Foucault de milieux ferromagnétiques : De l'expérience au modèle d'interaction. PhD thesis, Université de Paris-Sud 11, France, 2012. 50
- [99] R. Hamia, Performances et apports des capteurs magnétiques à très haute sensibilité aux systèmes de Contrôle Non Destructif par Courant de Foucault. PhD thesis, Université de CAEN / Basse Normandie, France, 2011. 51
- [100] R. Scorretti, Caractérisation numérique et expérimentale du champ magnétique B.F. généré par des systèmes électrotechniques en vue de la modélisation des courants induits dans le corps humain. PhD thesis, Ecole Centrale de Lyon, France, dec 2003.
 51
- [101] H. Menana, Modélisation 3D simplifiée pour l'évaluation non destructive des matériaux composites anisotropes. PhD thesis, Université de Nantes, France, 2009. 51
- [102] B. Ramdane, Contribution à la modélisation tridimensionnelle de la technique thermoinductive de contrôle non destructif : Développement d'un outil de conception, d'analyse et d'aide à la décision. PhD thesis, Université de Nantes, 2009. 51
- [103] J. Cugnoni, *Identifiaction par recalage modal et fréquentiel en matériaux compoistes*.PhD thesis, Ecole Polythecnique de Lausane, Suisse, 2004. 51
- [104] T. Pech, "Méthodes électriques de mesure des pertes dans des bobines supraconductrices parcourues par des courants alternatifs," *Rev. Phys. Appliquée*, vol. 5, p. 357, 1970. 54
- [105] W. TSe, Caractérisation électrique de matériaux en composite pour fuselages d'avions. Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal, 2010. 57
- [106] Y. Liao, Y. Zhang, and K. Cai, "The Study on Equivalent Models of Finite-size Carbon Fiber Composite Materials," *PIERS Proc.*, vol. 1, pp. 2052–2056, 2014. 62

- [107] A. Mehdipour, Advanced Carbon Fiber Composite Materials for Shielding and Antenna Applications. PhD thesis, Concordia University, Montreal, Quebec, Canada, 2011. 62
- [108] H. Berger, S. Kari, U. Gabbert, R. Rodriguez-Ramos, R. Guinovart, J. A. Otero, and J. Bravo-Castillero, "An analytical and numerical approach for calculating effective material coefficients of piezoelectric fiber composites," in *Int. J. Solids Struct.*, vol. 42, pp. 5692–5714, 2005. 62
- [109] M. Kulkarni and R. Brady, "A model of global thermal conductivity in laminated carbon/carbon composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 57, no. 3, pp. 277–285, 1997.
 63, 128
- [110] S. Bensaid, D. Trichet, and J. Fouladgar, "Electromagnetic and thermal behaviors of multilayer anisotropic composite materials," in *IEEE Trans. Magn.*, vol. 42, pp. 995– 998, 2006. 63
- [111] S. Bensaid, D. Trichet, and J. Fouladgar, "Electrical Conductivity Identification of Composite Materials Using a 3-D Anisotropic Shell Element Model," vol. 45, no. 3, pp. 1859–1862, 2009. 63
- [112] S. Bensaid, D. Trichet, and J. Fouladgar, "Electrical Conductivity Identification of Composite Materials Using a 3-D Anisotropic Shell Element Model," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 45, no. 3, pp. 1859–1862, 2009. 63
- [113] Z. Ren, "Degenerated whitney prism elements general nodal and edge shell elements for field computation in thin structures," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 34, no. 5 PART 1, pp. 2547–2550, 1998. 63, 129
- [114] Z. Ren, "Solving 3-D eddy current problem containing thin cracks using dual formulations and shell elements," *IEE Proceedings-Science, Meas. Technol.*, vol. 146, no. 1, pp. 9–14, 1999. 63, 129
- [115] H. K. BUI, G. Wasselynck, D. Trichet, and G. Berthiau, "Degenerated hexahedral Whitney elements for electromagnetic fields computation in multi-layer anisotropic thin regions," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 52, no. 3, pp. 3–6, 2015. 63, 129
- [116] M. Belkadi, Contribution à l'homogénéisation multi-échelle des propriétés électromagnétiques des matériaux en poudres de fer. PhD thesis, Thèse de doctorat de l'université de Nantes, France, 2009. 67
- [117] K. Shimada, Physically based mesh generation : automated triangulation of surfaces and volumes via bubble packing. PhD thesis, Massachusets Institute of Technology, USA, 1993. 69

- [118] A. Gillet, P. Olivier, A. A. Maghribi, and I. E. Sawi, "Prédiction des propriétéss électrique d'un composite aéronautique," *JNC 16*, *Juin*, 2009. 6, 74, 75
- [119] J. Wen, Z. Xia, and F. Choy, "Damage detection of carbon fiber reinforced polymer composites via electrical resistance measurement," *Compos. Part B Eng.*, vol. 42, no. 1, pp. 77–86, 2011. 78
- [120] H. Huang, C. Yang, and Z. Wu, "Electrical sensing properties of carbon fiber reinforced plastic strips for detecting low-level strains," *Smart Mater. Struct.*, vol. 21, no. 3, p. 035013, 2012. 78
- [121] O. Wiener, "Die Theorie des Mischkörpers für das Feld der stationären Strömung : Die Mittelwertsätze für Kraft, Polarisation und Energie," Abhand- lungen der Königlich-Sächsischen Gesellschaft der Wissenschaften vol. 1. Hirzel., 1913. 78
- [122] W. Wu, S. Krishnan, T. Yamada, X. Sun, P. Wilhite, R. Wu, K. Li, and C. Y. Yang, "Contact resistance in carbon nanostructure via interconnects," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 16, p. 163113, 2009. 78
- [123] K. Li, R. Wu, P. Wilhite, V. Khera, S. Krishnan, X. Sun, and C. Y. Yang, "Extraction of contact resistance in carbon nanofiber via interconnects with varying lengths," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, no. 25, p. 253109, 2010. 78
- [124] L. Chun, S. Pornsak, P. Amama, T. Fisher, X. Xu, and R. G. Reifenberger, "Measurement of metal / carbon nanotube contact resistance by adjusting contact length using laser ablation," *Nanotechnology*, vol. 19, no. 12, p. 125703, 2008. 78
- [125] H. Hertz, "Über die Berührung fester elastischer Körper. On the contact of rigid elastic solids," *J. fur die Reine und Angew. Math.*, vol. 1882, no. 92, pp. 156–171, 1882.
- [126] R. Holm, Electric Contacts. 1967. 78, 80
- [127] H. Yu, D. Heider, and S. Advani, "A 3D microstructure based resistor network model for the electrical resistivity of unidirectional carbon composites," *Compos. Struct.*, vol. 134, pp. 740–749, 2015. 83
- [128] J. B. Park, T. K. Hwang, H. G. Kim, and Y. D. Doh, "Experimental and numerical study of the electrical anisotropy in unidirectional carbon-fiber-reinforced polymer composites," *Smart Mater. Struct.*, vol. 16, no. 1, pp. 57–66, 2006. 83
- [129] M. W. Pilling, B. Yates, M. A. Black, and P. Tattersall, "The thermal conductivity of carbon fibre-reinforced composites," *J. Mater. Sci.*, vol. 14, no. 6, pp. 1326–1338, 1979. 86, 155

- [130] J. Mottram and R. Taylor, "Thermal conductivity of fibre-phenolic resin composites. Part II : Numerical evaluation," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 29, no. 3, pp. 211–232, 1987.
- [131] Instruments Keithley, "Low level measurements handbook : precision DC current, voltage and resistance measurements," *Keithley, 6th ed. Auflage*, 2004. 98
- [132] CENELEC, "Contact resistance Millivolt level method" In Connectors for electronic equipment Tests and measurements, vol. IEC 60512-. 2002. 98
- [133] I. Miccoli, F. Edler, H. Pfnür, and C. Tegenkamp, "The 100th anniversary of the fourpoint probe technique : the role of probe geometries in isotropic and anisotropic systems," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 27, no. 22, p. 223201, 2015. 99
- [134] K. I. P.-Y. Duvivier, V. Mandrillon, J.-P. Polizzi, "Étude de la résistance électrique d ' un contact Au / Au en fonction de la force appliquée," 19 ème Congrès Français Mécanique, 2009. 100
- [135] P. Chazalon, Étude des Variations de la Résistance Électrique du Contact Balai Bague de l'Alternateur. PhD thesis, Ecole Centrale de Paris, France, 2013. 7, 100
- [136] E. B. Jeon, T. Fujimura, K. Takahashi, and H. S. Kim, "An investigation of contact resistance between carbon fiber/epoxy composite laminate and printed silver electrode for damage monitoring," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 66, pp. 193– 200, 2014. 101
- [137] Y. Qun, L. I. Xu, and W. Ping, "Resistivity measurement of conductive asphalt concrete based on two electrode method," *J. Cent. South Univ.*, vol. 20, pp. 2599– 2604, 2013. 101
- [138] J. Abry, S. Bochard, A. Chateauminois, M. Salvia, and G. Giraud, "In situ detection of damage in CFRP laminates by electrical resistance measurements," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 59, no. 6, pp. 925–935, 1999. 101
- [139] L. J. van der Pauw, "A method of measuring the resistivity and Hall coefficient on lamellae of arbitrary shape," *Philips Tech. Rev.*, vol. 20, pp. 220–224, 1958. 101
- [140] W. L. V. Price, "Extension of van der Pauw's theorem for measuring specific resistivity in discs of arbitrary shape to anisotropic media," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 5, no. 6, pp. 1127–1132, 1972. 101
- [141] G. Rietveld, C. V. Koijmans, L. C. a. Henderson, M. J. Hall, S. Harmon, P. Warnecke, and B. Schumacher, "DC conductivity measurements in the Van Der Pauw geometry," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, vol. 52, no. 2, pp. 449–453, 2003. 101

- [142] T. Matsumura and Y. Sato, "A Theoretical Study on Van Der Pauw Measurement Values of Inhomogeneous Compound Semiconductor Thin Films," J. Mod. Phys., vol. 01, no. 05, pp. 340–347, 2010. 101
- [143] E. Planes, F. Gloaguen, N. AlbelArola, and L. Flandin, "Spatial distribution of the electrical conductivity in highly filled polymers : Experiment, modeling, and application to bipolar plates," *J. Appl. Phys.*, vol. 114, no. 22, p. 223710, 2013. 101, 102
- [144] A. Uhlir, "The Potentials of Infinite Systems of Sources and Numerical Solutions of Problems in Semiconductor Engineering," *Bell Syst. Tech. J.*, pp. 105–128, 1955.
 101
- [145] X. Huang, C. Gao, Y. Han, M. Li, C. He, A. Hao, D. Zhang, C. Yu, G. Zou, and Y. Ma, "Finite element analysis of resistivity measurement with van der Pauw method in a diamond anvil cell," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 90, no. 24, p. 242102, 2007. 102
- [146] C. Kasl and M. J. R. Hoch, "Effects of sample thickness on the van der Pauw technique for resistivity measurements," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 76, no. 3, pp. 1–5, 2005.
 102
- [147] T. Clarysse, D. Vanhaeren, and W. Vandervorst, "Impact of probe penetration on the electrical characterization of sub-50 nm profiles," J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanom. Struct., vol. 20, no. 1, p. 459, 2002. 102
- [148] K. Ishikawa, Introduction to quality control. Tokyo : Productivity Press, 1990. 105
- [149] JCGM/WG 1, "Évaluation des données de mesure Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure," *www.bipm.org*, 2008. 9, 109
- [150] Q.-g. Ning and T.-w. Chou, "A general analytical model for predicting the transverse effective thermal conductivities of woven fabric composites," *Construction*, no. 97, pp. 315–322, 1998. 115
- [151] Q.-G. Ning and T.-W. Chou, "Closed-form solutions of the in-plane effective thermal conductivities of woven-fabric composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 55, no. 1, pp. 41–48, 1995. 115
- [152] J. Halpin, K. Jerine, and J. Whitney, "The Laminate Analogy for 2 and 3 Dimensional Composite Materials," vol. 5, no. January, pp. 36–49, 1971. 115
- [153] D. Lecointe, "Caractérisation et simulation des processus de transferts lors d'injection de résine pour le procédé RTM," 1999. 115

- [154] M. Villière, D. Lecointe, V. Sobotka, N. Boyard, and D. Delaunay, "Experimental determination and modeling of thermal conductivity tensor of carbon/epoxy composite," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 46, no. 1, pp. 60–68, 2013. 115
- [155] M. Rao, M. Pantiuk, and P. Charalambides, "Modeling the Geometry of Satin Weave Fabric Composites," *J. Compos. Mater.*, vol. 43, no. 1, pp. 19–56, 2008. 116, 122
- [156] R. Akkerman, "Laminate mechanics for balanced woven fabrics," *Compos. Part B Eng.*, vol. 37, no. 2, pp. 108–116, 2005. 119
- [157] J. W. S. Hearle and W. J. Shanahan, "11- An Energy Method for Calculations in Fabric Mechanics Part I : Principles of the Method," J. Text. Inst., vol. 69, no. 4, pp. 81–91, 1978. 121
- [158] W. J. Shanahan and J. W. S. Hearle, "Energy Method for Calculations in Fabric Mechanics 2. Examples of Application of the Method To Woven Fabrics.," *J. Text. Inst.*, vol. 69, no. 4, pp. 92–100, 1978. 121
- [159] J. L. Kuhn and P. G. Charalambides, "Modeling of Plain Weave Fabric Composite Geometry," J. Compos. Mater., vol. 33, no. 3, pp. 188–220, 1999. 121
- [160] F. T. Peirce, 5 The Geometry of Cloth Structure, vol. 28. 1937. 121
- [161] G. N. Dul'nev, "Thermal conductivity of mixtures with interpenetrating components," 1973. 122, 153
- [162] A. Daire, W. Goeke, and M. A. Tupta, "New instruments can lock out lock-ins," 2006.130
- [163] A. Dasgupta and R. Agarwal, "Orthotropic Thermal Conductivity of Plain-Weave Fabric Composites Using a Homogenization Technique," *J. Compos. Mater.*, vol. 26, no. 18, pp. 2736–2758, 1992. 155



ANNEXES

A.1 Calcul des résistances électriques équivalentes des cellules unitaires

Pour déterminer les résistances électriques équivalentes des différentes cellules génériques qui reconstituent le volume équivalent représentatif du pli tissé (VER_B), nous avons d'abord évalué la résistance électrique des éléments constitutifs des cellules dans leur direction principale. Puis, nous avons déduit de ces calculs les résistances électriques équivalentes des cellules.

A.1.1 Résistances des éléments constitutives des cellules unitaires

En analysant la géometrie du matériau composite et les travaux de G. N. Dul'nev [161], nous remarquons que chaque cellule unitaire peut être reconstruite par opérations de symétrie/translation à partir des quatre types de cellules génériques (élément (a), élément (b), élément (c) et élément (d)) définis à la FIGURE. 4.6. De ce fait, pour chacun des quatre éléments constitutifs, nous avons déterminé dans les sous-sections ci-dessous leurs résistances électriques équivalentes dans leur plan (0, x, y, z).

A.1.1.1 Élément (a)

 \rightarrow Suivant l'axe \overrightarrow{x}



FIGURE A.1 : Décomposition géométrique de l'élément (a) et son circuit électrique en x.

$$R_{1} = \frac{g_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h} \qquad \left| \begin{array}{c} R_{2} = R_{6} = \frac{g_{f}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{3} = R_{5} = \frac{g_{f}}{\sigma_{w_{l}}^{'} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{4} = \frac{g_{f}}{\sigma_{w_{l}}^{'} \cdot a_{w} \left(h_{w} - \frac{1}{2}h_{f}\right)} \\ r_{5} = \frac{g_{f}}{\sigma_{w_{l}}^{'} \cdot a_{w} \left(h_{w} - \frac{1}{2}h_{f}\right)} \\ R_{7} = \frac{2g_{f}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{8} = R_{11} = \frac{2\left(a_{f} + g_{f}\right)}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{m}} \\ R_{9} = \frac{a_{f}}{\sigma_{w_{l}} \cdot a_{w} \cdot h_{w}} \\ R_{9} = \frac{a_{f}}{\sigma_{w_{l}} \cdot a_{w} \cdot h_{w}} \\ R_{10} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{12} = \frac{2a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{m}} \\ R_{13} = 3 \cdot R_{15} = \frac{3a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{w}} \\ R_{14} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}}^{'} \cdot g_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{16} = \frac{2a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{m}} \\ \end{array}$$
(A.1)

$$\frac{1}{R_x^{(a)}} = \frac{1}{R_1 + \frac{1}{\frac{1}{R_{12}} + \frac{1}{R_{13}} + \frac{1}{R_{14}} + \frac{1}{R_{15}} + \frac{1}{R_{16}}}} + \frac{1}{R_{11}} + \frac{1}{\frac{1}{R_{10}} + \frac{1}{\frac{1}{R_7} + \frac{1}{R_6 + R_5}}} + \frac{1}{\frac{1}{R_9} + \frac{1}{\frac{1}{\frac{1}{R_4} + \frac{1}{R_3 + R_2}}}} + \frac{1}{R_8}$$
(A.2)

où σ_m est la conductivité électrique de la matrice polymère, σ_{d_l} et σ_{d_t} (d=w, f) sont respectivement les conductivités électriques longitudinale et transverse des mèches.

Remarques : pour déterminer la résistance électrique équivalente dans l'axe \overrightarrow{y} des quatre éléments constitutifs des cellules génériques, il suffit d'inter changer les indices w et f dans les équations (A.1),(A.6),(A.10) et (A.14).

Les conductivités électriques σ'_{d_l} et σ'_{d_t} (d=w, f) sont respectivement la conductivité longitudinale et la conductivité transverse des mèches avec des fibres inclinées suivant un angle θ_d moyen dans la direction du fil d et données par la transformation géométrique ci-dessous [129, 163] :

$$\sigma'_{d_l} = \sigma_{d_l} \cos^2 \theta_d + \sigma_{d_t} \sin^2 \theta_d$$

$$\sigma'_{d_t} = \sigma_{d_l} \sin^2 \theta_d + \sigma_{d_t} \cos^2 \theta_d$$
(A.3)

 \rightarrow Suivant l'axe \overrightarrow{z}



FIGURE A.2 : Décomposition géométrique de l'élément (a) et son circuit électrique en z.

$$\frac{1}{R_z^{(a)}} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2 + R_3 + R_4} + \frac{1}{R_5 + R_6 + R_7 + R_8} + \frac{1}{R_9 + R_{10} + R_{11}}$$
(A.5)

A.1.1.2 Élément (b)

 \rightarrow Suivant l'axe \overrightarrow{x}



FIGURE A.3 : Décomposition géométrique de l'élément (b) et son circuit électrique en x.

$$R_{1} = \frac{g_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h} \qquad R_{2} = \frac{g_{f}}{\sigma_{w_{l}} \cdot a_{w} \cdot h_{w}} \qquad R_{3} = \frac{g_{f}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{f}}$$

$$R_{4} = R_{7} = \frac{2(a_{f} + g_{f})}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{m}} \qquad R_{5} = \frac{a_{f}}{\sigma_{w_{l}} \cdot a_{w} \cdot h_{w}} \qquad R_{6} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot a_{w} \cdot h_{f}}$$

$$R_{8} = \frac{2a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{m}} \qquad R_{9} = 3 \cdot R_{11} = \frac{3a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{w}} \qquad R_{10} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}}' \cdot g_{w} \cdot h_{f}} \qquad (A.6)$$

$$R_{12} = \frac{2a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{m}}$$

$$\frac{1}{R_x^{(b)}} = \frac{1}{R_1 + \frac{1}{\frac{1}{R_8} + \frac{1}{R_9} + \frac{1}{R_{10}} + \frac{1}{R_{11}} + \frac{1}{R_{12}}} + \frac{1}{R_7} + \frac{1}{R_6 + R_3} + \frac{1}{R_5 + R_2} + \frac{1}{R_4}$$
(A.7)

 \rightarrow Suivant l'axe \overrightarrow{z}



FIGURE A.4 : Décomposition géométrique de l'élément (b) et son circuit électrique en z.

$$R_{1} = \frac{4h}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot g_{f}} \qquad | R_{2} = \frac{2h_{m}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot g_{f}} R_{3} = \frac{4h_{w}}{\sigma_{w_{t}} \cdot a_{w} \cdot g_{f}} \qquad | R_{4} = \frac{4h_{f} + 2h_{m}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot g_{f}} R_{5} = R_{8} = \frac{2h_{m}}{\sigma_{m} \cdot a_{f} \cdot a_{w}} \qquad | R_{6} = \frac{4h_{w}}{\sigma_{w_{t}} \cdot a_{f} \cdot a_{w}}$$
(A.8)
$$R_{7} = \frac{4h_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot a_{f} \cdot a_{w}} \qquad | R_{9} = \frac{4h_{w} + 2h_{m} - g_{w} \cdot \tan \alpha_{f}}{\sigma_{m} \cdot a_{f} \cdot g_{w}}$$
(A.8)
$$R_{10} = \frac{4h_{f}}{\sigma_{f_{t}}' \cdot g_{w} \cdot a_{f}} \qquad | R_{11} = \frac{2h_{m} + g_{w} \cdot \tan \alpha_{f}}{\sigma_{m} \cdot a_{f} \cdot g_{w}}$$
(A.9)

où σ_m est la conductivité électrique de la matrice polymère, σ_{d_l} et σ_{d_t} (d=w, f) sont respectivement les conductivités électriques longitudinale et transversale.

A.1.1.3 Élément (c)

 \rightarrow Suivant l'axe \overrightarrow{x}



FIGURE A.5 : Décomposition géométrique de l'élément (c) et son circuit électrique en x.

$$R_{1} = \frac{g_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h} \qquad \left| \begin{array}{c} R_{2} = R_{6} = \frac{g_{f}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{4} = \frac{g_{f}}{\sigma_{w_{l}}^{'} \cdot a_{w} \left(h_{w} - \frac{1}{2}h_{f}\right)} \\ R_{7} = \frac{2g_{f}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{8} = R_{11} = \frac{2\left(a_{f} + g_{f}\right)}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{m}} \\ R_{9} = \frac{a_{f}}{\sigma_{w_{l}} \cdot a_{w} \cdot h_{w}} \\ R_{10} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{11} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot g_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{12} = \frac{2a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{m}} \\ R_{13} = \frac{a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{w}} \\ R_{14} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot g_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{15} = \frac{2a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{m}} \\ \frac{1}{R_{1}^{(b)}} = \frac{1}{R_{1} + \frac{1}{\frac{1}{R_{12}} + \frac{1}{R_{13}} + \frac{1}{R_{14}} + \frac{1}{R_{15}}} \\ + \frac{1}{\frac{1}{R_{12}} + \frac{1}{R_{13}} + \frac{1}{R_{14}} + \frac{1}{R_{15}}} \\ + \frac{1}{\frac{1}{R_{9}} + \frac{1}{\frac{1}{\frac{1}{R_{4}} + \frac{1}{R_{3} + R_{2}}}} \\ + \frac{1}{R_{9}} \\ \end{array}$$
(A.10)
(A.10)
(A.10)
(A.10)
(A.10)
(A.11)
(A.

où σ_m est la conductivité électrique de la matrice polymère, σ_{d_l} et σ_{d_t} (d=w, f) sont respectivement les conductivités électriques longitudinale et transversale des mèches.

\rightarrow Suivant l'axe \overrightarrow{z}



FIGURE A.6 : Décomposition géométrique de l'élément (c) et son circuit électrique en z.

$$R_{1} = \frac{4h}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot g_{f}} \qquad | R_{2} = \frac{g_{f} \cdot \tan \alpha_{w} + 2h_{m}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot g_{f}} R_{3} = \frac{4h_{w}}{\sigma'_{w_{t}} \cdot a_{w} \cdot g_{f}} \qquad | R_{4} = \frac{4h_{f} + 2h_{m} - g_{f} \cdot \tan \alpha_{w}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot g_{f}} R_{5} = R_{8} = \frac{2h_{m}}{\sigma_{m} \cdot a_{f} \cdot a_{w}} \qquad | R_{6} = \frac{4h_{w}}{\sigma_{w_{t}} \cdot a_{f} \cdot a_{w}} R_{7} = \frac{4h_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot a_{f} \cdot a_{w}} \qquad | R_{9} = \frac{4h_{w} + 2h_{m}}{\sigma_{m} \cdot a_{f} \cdot g_{w}} R_{10} = \frac{4h_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot g_{w} \cdot a_{f}} \qquad | R_{11} = \frac{2h_{m}}{\sigma_{m} \cdot a_{f} \cdot g_{w}} \frac{1}{R_{z}^{(a)}} = \frac{1}{R_{1}} + \frac{1}{R_{2} + R_{3} + R_{4}} + \frac{1}{R_{5} + R_{6} + R_{7} + R_{8}} + \frac{1}{R_{9} + R_{10} + R_{11}}$$
(A.13)

où σ_m est la conductivité électrique du polymère, σ_{d_l} et σ_{d_t} (d=w, f) sont respectivement les conductivités électriques.

A.1.1.4 Élément (d)

 \rightarrow Suivant l'axe \overrightarrow{x}

$$R_{1} = \frac{g_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h} \qquad \left| \begin{array}{c} R_{2} = \frac{g_{f}}{\sigma_{w_{l}} \cdot a_{w} \cdot h_{w}} \\ R_{3} = \frac{g_{f}}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \end{array} \right| \\ R_{4} = R_{7} = \frac{2\left(a_{f} + g_{f}\right)}{\sigma_{m} \cdot a_{w} \cdot h_{m}} \qquad \left| \begin{array}{c} R_{5} = \frac{a_{f}}{\sigma_{w_{l}} \cdot a_{w} \cdot h_{w}} \\ \sigma_{w_{l}} \cdot a_{w} \cdot h_{w} \end{array} \right| \\ R_{6} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot a_{w} \cdot h_{f}} \\ R_{8} = \frac{2a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot (2h_{w} + h_{m})} \qquad \left| \begin{array}{c} R_{9} = \frac{a_{f}}{\sigma_{f_{t}} \cdot g_{w} \cdot h_{f}} \\ \sigma_{f_{t}} \cdot g_{w} \cdot h_{f} \end{array} \right| \\ R_{10} = \frac{2a_{f}}{\sigma_{m} \cdot g_{w} \cdot h_{m}} \end{aligned}$$
(A.14)



FIGURE A.7 : Décomposition géométrique de l'élément (d) et son circuit électrique en x.

$$\frac{1}{R_x^{(b)}} = \frac{1}{R_1 + \frac{1}{\frac{1}{R_8} + \frac{1}{R_9} + \frac{1}{R_{10}}}} + \frac{1}{R_7} + \frac{1}{R_6 + R_3} + \frac{1}{R_5 + R_2} + \frac{1}{R_4}$$
(A.15)

où σ_m est la conductivité électrique de la matrice polymère, σ_{d_l} et σ_{d_t} (d=w, f) sont respectivement les conductivités électriques longitudinale et transversale des mèches.

 \rightarrow Suivant l'axe \overrightarrow{z}



FIGURE A.8 : Décomposition géométrique de l'élément (d) et son circuit électrique en z.

$$\frac{1}{R_z^{(a)}} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2 + R_3 + R_4} + \frac{1}{R_5 + R_6 + R_7 + R_8} + \frac{1}{R_9 + R_{10} + R_{11}}$$
(A.17)

où σ_m est la conductivité électrique de la matrice polymère, σ_{d_l} et σ_{d_t} (d=w, f) sont respectivement les conductivités électriques longitudinale et transversale des mèches.

TEIJIN

A.2 Caractéristiques physiques et géométriques des fibres

||||| TohoTenax|

Delivery programme and characteristics for Tenax[®] HTA filament yarn

Brand name Production site Fiber family & tensile properties		Tenax [®] J HTA40	Tenax [®] J / E HTA40	Tenax [®] J / E HTA40					
					Sizing properties		F15 / H15	E13	E13
					Number of filaments		1K	ЗК	6K
Nominal linear density 1)	[tex]	67	200	400					
Twist	[t/m]	15S	0/15Z	0/10Z					
Running length per kg	[m/kg]	15000	5000	2500					
Package weight, net	[kg]	0,2 • 0,5	1,0 • 2,0	2,0 • 4,0					
1) obno Präparationsauftrag									

1) ohne Präparationsauftrag

Filament diameter	[µm]	7
Density	[g/cm ³]	1,76
Tensile strength	[MPa]	3950
Tensile modulus	[GPa]	238
Elongation at break	[%]	1,7
Specific heat capacity	[J/kgK]	710
Thermal conductivity	[W/mK]	10
Coefficient of thermal expansion [[10 ⁻⁶ /K]	-0,1
Specific electrical resistance	[Ω cm]	1,6 x 10 ⁻³

Sizing properties for fiber family HTA

HTA is a classic Tenax[®] high performance carbon fiber. The high tenacity (HT) fibers provide excellent mechanical laminate properties.

F15 = Type with ca. 2,5 % sizing based on polyurethane

H15 = Type with ca. 2,5 % sizing based on epoxy resin

E13 = Type with ca. 1,3 % sizing based on epoxy resin

Please contact our sales team any time for choosing the right type. The stated numbers are typical values. For design purposes please request fiber specification.

Please note the application (aerospace or industry & sports) on your order.

The export or transfer of carbon fibers can be subject to authorization, depending on end-use and final destination.





Thèse de Doctorat

Fiacre Djonkone SENGHOR

Identification des propriétés anisotropes des matériaux complexes : application aux matériaux composites stratifiés

Identification of anisotropic properties of complex materials: application to stratified composites.

Résumé

Les travaux présentés dans cette thèse portent sur l'identification des propriétés électriques anisotropes de matériaux composites complexes. Ils visent à contribuer à une meilleure maîtrise de l'impact des paramètres des procédés de fabrications des différentes architectures, des formulations et du pourcentage de renforts, etc., sur le comportement électrique de ces composites. Ils s'inscrivent dans le cadre du projet de recherche FUI ACCEA (Amélioration des Conductivités des Composites pour Équipements Aéronautiques) financé en partie par la région Pays de la Loire. Ce projet a pour but de concevoir un matériau composite multi-fonctionnel d'un nouveau genre à matrice thermoplastique chargée en graphite de carbone qui verrait ses propriétés électriques et thermiques améliorées sans dégrader ses propriétés mécaniques. Dès lors l'une des principales difficultés du concepteur est donc de trouver des outils innovants de mise en œuvre, pour améliorer les propriétés thermique et électrique de ces composites de manière non intrusive et nondestructive pour leurs propriétés mécaniques avec un moindre coût. C'est dans cette logique que nous proposons dans ce travail de thèse, une approche modélisation et une approche de mesure expérimentale du tenseur de conductivité électrique de ses composites, afin de fournir un outil d'aide à la décision sur le choix de la matrice, de l'armure, du procédé de mise en œuvre, etc. Une confrontation entre les résultats de simulations et les mesures expérimentales a permis de valider le modèle développé.

Mots clés

Matériaux composites, Caractérisation électrique, Homogénéisation multi-échelle, Percolation, Anisotropie, Tenseur de conductivité électrique.

Abstract

The works presented in this thesis focuses on the identification of anisotropic electrical properties of complex composite materials. They aim to contribute to a better control of the impact of manufacturing process parameters, different architectures, formulations and fibres filling rate, etc., on the electrical behaviour of these composite materials. They inscribe themselves in the frame of the FUI ACCEA research project funded in part by the region Pays de la Loire. This project aims to produce a multi-functional composite material of a new type of thermoplastic matrix loaded with carbon graphite which would see its electrical and thermal properties improved without degrading the mechanical properties. From then one of the main difficulties of the designer is to find innovative implementation tools, to improve the thermal and electrical properties of these composites non-intrusive and non-destructive to their mechanical properties with less cost. It is in this logic that this PhD work is interested in modelling and experimental measurement of the electrical conductivity tensor of this composites to provide an help to the decision on the choice of matrix, of the weave, the implemented method, etc. The comparison between the simulation and experimental results gives a good concordance.

Key Words

Composite materials, Electrical characterization, Multi-scale homogenization, Percolation, Anisotropy, Electrical conductivity tensor.