



**HAL**  
open science

# Outils de caractérisation thermophysique et modèles numériques pour les composites thermostructuraux à haute température

Christophe Lorrette

► **To cite this version:**

Christophe Lorrette. Outils de caractérisation thermophysique et modèles numériques pour les composites thermostructuraux à haute température. Matériaux. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2007. Français. NNT: . tel-00410254

**HAL Id: tel-00410254**

**<https://theses.hal.science/tel-00410254>**

Submitted on 19 Aug 2009

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

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

N° d'ordre : 3364

# THESE

présentée à

## **l'Université Bordeaux 1 Ecole Doctorale des Sciences Chimiques**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR

Spécialité : PHYSICO-CHIMIE DE LA MATIÈRE CONDENSÉE

par

**Christophe LORRETTE**

Ingénieur de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Toulouse

Laboratoire d'accueil : LCTS

---

*Outils de caractérisation thermophysique et modèles numériques  
pour les composites thermostrostructuraux à haute température*

---

Soutenue le 20 avril 2007 devant la commission d'examen :

MM.	P.	DELHAES	Directeur de recherche CNRS	Président
	Y.	JARNY	Professeur des universités	Rapporteur
	J.J.	SERRA	Responsable Groupe Expertise DGA	Rapporteur
	J.C.	BATSALE	Professeur des universités	Examineur
	S.	JACQUES	Maître de conférence	Examineur
	B.	HAY	Responsable unité thermique LNE	Examineur
	R.	PAILLER	Ingénieur de recherche CNRS	Directeur de thèse
	J.M.	GOYHENECHÉ	Ingénieur - chercheur CEA	Co-directeur de thèse



# Remerciements

Ce travail a été réalisé au laboratoire des Composites Thermostructuraux (LCTS) en partenariat industriel avec le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA, centre du Ripault).

Je tiens à exprimer mes remerciements les plus sincères à messieurs Jean Christophe Batsale, Professeur des universités à l'ENSAM, René Pailler, ingénieur de recherche au CNRS et Jean Marc Goyhénèche, ingénieur chercheur au CEA, pour avoir encadré ces travaux de thèse mais également et surtout pour leurs qualités humaines et la confiance qu'ils ont su placer en moi pour conduire cette étude. Qu'ils trouvent ici l'expression de toute ma reconnaissance et de mon amitié.

Je remercie vivement tous les membres de mon jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail, et en particulier messieurs Jean Jacques Serra et Yvon Jarny pour leur rapport très pertinent.

Merci à l'ensemble du personnel du laboratoire ainsi qu'à toutes les personnes qui par leur soutien, leur travail ou leur conseil ont contribué à la réalisation de cette thèse. Ces trois années écoulées resteront pour moi un souvenir impérissable.



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>1 Synthèse bibliographique</b>	<b>15</b>
1.1 Les matériaux composites . . . . .	17
1.1.1 La diversité des matériaux composites . . . . .	17
1.1.2 Les composites thermostructuraux : éléments constitutifs et propriétés . . . . .	18
1.1.3 Structures et propriétés des composites thermostructuraux . .	23
1.2 Modélisation thermique des composites . . . . .	27
1.2.1 Equation des milieux hétérogènes anisotropes . . . . .	27
1.2.2 Problèmes liés aux hétérogénéités des composites . . . . .	28
1.2.3 Principales méthodes de modélisation . . . . .	32
1.3 Caractérisation thermique à haute température . . . . .	43
1.3.1 Introduction à la mesure de propriétés thermophysiques et classification des méthodes . . . . .	43
1.3.2 Les méthodes sans contact . . . . .	45
1.3.3 Les méthodes avec contact . . . . .	48
1.3.4 Bilan et confrontation des méthodes . . . . .	53
1.4 Conclusion du chapitre et stratégie de l'étude . . . . .	55
<b>2 Modélisation thermique des composites</b>	<b>57</b>
2.1 Le triple changement d'échelle . . . . .	59
2.1.1 Démarche et modèles retenus . . . . .	59
2.1.2 La méthode de corrélation flux/force (FFCM) . . . . .	60
2.2 Premier changement d'échelle . . . . .	64
2.2.1 Mise en place de la procédure . . . . .	64
2.2.2 Prise en compte du caractère anisotrope transverse des fibres .	64
2.2.3 Applications et validations de la modélisation . . . . .	66
2.3 Second et troisième changement d'échelle . . . . .	82
2.3.1 Originalité du modèle proposé . . . . .	82
2.3.2 Représentation des géométries idéalisées . . . . .	84
2.3.3 Résolution du problème thermique . . . . .	88

2.3.4	Validation et application à l'optimisation thermique . . . . .	89
2.4	Conclusion du chapitre . . . . .	93
<b>3</b>	<b>Démarche et méthode pour la caractérisation thermique en température</b>	<b>95</b>
3.1	Introduction sur la démarche entreprise . . . . .	97
3.1.1	Objectifs . . . . .	97
3.1.2	Mise en place de la méthode . . . . .	98
3.1.3	Configuration expérimentale retenue . . . . .	99
3.2	Méthode du plan chaud avec mesure de deux températures . . . . .	101
3.2.1	Description et principe . . . . .	101
3.2.2	Modélisation de l'expérience . . . . .	102
3.2.3	Estimation des propriétés thermophysiques . . . . .	104
3.3	Applications à température ambiante . . . . .	109
3.3.1	Matériaux étudiés . . . . .	109
3.3.2	Choix de l'isolant thermique et méthode pour la détermination de son effusivité . . . . .	110
3.3.3	Résultats expérimentaux - validation du modèle . . . . .	111
3.4	Conclusion du chapitre . . . . .	117
<b>4</b>	<b>Instruments de mesure pour la caractérisation thermique en température</b>	<b>119</b>
4.1	Introduction sur la conception . . . . .	121
4.2	Isolation électrique . . . . .	122
4.2.1	Voies de synthèse du nitrure de bore hexagonal . . . . .	122
4.2.2	Mise en place d'installations CVD . . . . .	124
4.2.3	Elaboration de revêtements isolants . . . . .	126
4.3	Développement de nouveaux instruments de mesures thermiques et applications . . . . .	129
4.3.1	Capteur pour la mesure de température par contact . . . . .	129
4.3.2	Sonde d'excitation thermique par contact . . . . .	147
4.4	Conclusion du chapitre . . . . .	163
<b>5</b>	<b>Applications</b>	<b>165</b>
5.1	Conductivité thermique d'un composite à température ambiante . . .	167
5.1.1	Données expérimentales . . . . .	167
5.1.2	Prévision de la conductivité thermique effective . . . . .	169
5.1.3	Mesure des propriétés thermiques par la méthode du plan chaud à deux températures . . . . .	175
5.1.4	Confrontation calcul/mesure . . . . .	182
5.2	Caractérisation thermique d'une céramique en température . . . . .	184
5.2.1	Dispositif expérimental . . . . .	184

5.2.2	Etalonnage du plan chauffant . . . . .	185
5.2.3	Résultats et discussion . . . . .	186
	<b>Conclusion générale</b>	<b>193</b>
	<b>A Formalisme des quadripôles thermiques</b>	<b>207</b>
	<b>B Publication</b>	<b>215</b>
	« Deposition and characterization of hex-BN coating on carbon fibres using tris(dimethylamino)borane precursor » . . . . .	215
	<b>C Communication 1</b>	<b>225</b>
	« Modélisation de la conductivité thermique des composites à renfort textile : homogénéisation par éléments finis sur un motif périodique complet » . . . . .	225
	<b>D Communication 2</b>	<b>233</b>
	« Multiscale model for the effective thermal conductivity computation of stratified woven fabric composite materials » . . . . .	233





# Nomenclature

## Lettres romaines

$A, B, C, D$	termes de la matrice quadripolaire	
$a$	diffusivité thermique	$[m^2.s^{-1}]$
$c_p$	capacité thermique	$[J.kg^{-1}.K^{-1}]$
$e$	épaisseur	$[m]$
$E$	effusivité thermique	$[J.m^{-2}.K.s^{-1/2}]$
$E_i$	effusivité thermique de l'isolant (méthode du plan chaud avec mesure de deux températures)	$[J.m^{-2}.K.s^{-1/2}]$
$H_i$	constante d'intensité (modèle d'inclusion)	$[K.m^{-1}]$
$h$	coefficient d'échange pertes convectives	$[W.m^{-2}.K^{-1}]$
$I$	intensité du courant	$[A]$
$k$	coefficient de dilatation thermique	$[K^{-1}]$
$l$	longueur du fil chauffant	$[m]$
$m$	masse	$[kg]$
$p$	variable de Laplace	
$P$	périmètre	$[m]$
$Q$	puissance électrique	$[W]$
$q_l$	puissance linéique	$[W.m^{-1}]$
$q_s$	puissance surfacique	$[W.m^{-2}]$
$R$	résistance thermique	$[W.K^{-1}]$
$R_c$	résistance thermique de contact	$[W.K^{-1}]$
$R_T$	résistance électrique	$[\Omega]$
$S$	surface	$[m^2]$
$T$	température	$[K]$
$t$	temps	$[s]$
$V_i$	coefficients de Stehfest	
$X_i$	sensibilité au paramètre i	
$u, v$	variables spatiales cartésiennes	$[m]$
$r, \theta$	coordonnées spatiales polaires	$[m], [rad]$
$x, y, z$	coordonnées spatiales cartésiennes	$[m]$

**Lettres grecques**

$\alpha$	fraction volumique	[%]
$\beta_i$	paramètres du modèle d'identification	
$\delta$	épaisseur des plis	[m]
$\Delta T$	écart de température	[K]
$\varepsilon$	porosité	[%]
$\theta$	transformée de Laplace de la température	
$\lambda$	conductivité thermique	[W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]
$\Lambda$	matrice de conductivité thermique	[W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]
$\rho$	masse volumique	[kg.m <sup>-3</sup> ]
$\rho_{lec}$	résistivité électrique	[ $\Omega$ .m]
$\varphi$	flux de chaleur	[W]
$\phi$	transformée de Laplace du flux de chaleur	
$\Phi$	densité de flux de chaleur	[W.m <sup>-2</sup> ]
$\psi_m$	paramètre traduisant l'arrangement des fibres (modèle de Nielsen)	[sans unité]
$\Omega$	orientation des plis	[°]

**Indices et exposants**

$f, m, r$	fibre, matrice, résine
$F, P, C$	fil, pli, composite
$R, L, T$	radial, longitudinal, transverse
$\theta$	orthoradial
$\parallel, \perp$	parallèle, perpendiculaire au pli

**Abréviations**

C.A.O.	Conception Assistée par Ordinateur
C.L.	Conditions aux Limites
C.V.D.	Chemical Vapor Deposition
C.V.I.	Chemical Vapor Infiltration
D.S.C.	Differential Scanning Calorimetry
F.F.C.M	Méthode de Corrélation Flux/Force
M.E.B.	Microscopie Electronique à Balayage
M.E.T.	Microscopie Electronique à Transmission
S.E.A.	Spectrométrie d'Electron Auger
T.H.T.	Traitement thermique à Haute Température
V.E.R.	Volume Élémentaire Représentatif

# Introduction générale

## GÉNÉRALITÉS - CADRE DE L'ÉTUDE

Le développement d'applications de très hautes technologies dans les domaines tels que l'aéronautique, le spatial ou le nucléaire conduit à des spécifications toujours plus exigeantes pour les matériaux. Le cas des composites thermostrostructuraux, dont la vocation est d'assurer des fonctions mécaniques à haute température (1000-3000°C) illustre parfaitement ce constat. Conçus à l'origine pour la fabrication de cols de tuyères équipant les moteurs de fusées, les composites thermostrostructuraux se sont imposés comme les matériaux souverains pour la protection thermique de corps de rentrée atmosphérique. L'optimisation de leurs propriétés tribologiques a récemment su en faire d'excellents candidats pour les disques de freins d'aéronefs. Actuellement, ces matériaux sont pressentis pour remplacer les alliages métalliques dans les futurs coeurs de réacteurs nucléaires (génération IV) qui devront fonctionner à des températures supérieures à 1000°C.

Pour toutes ces applications, les propriétés thermiques jouent un rôle qui, s'il est considéré comme secondaire vis-à-vis des propriétés mécaniques et chimiques, peut s'avérer extrêmement important. Le freinage par exemple, s'appuie sur les capacités du matériau à fonctionner comme un puit de chaleur, tandis que la rentrée atmosphérique impose que le matériau soit le plus isolant possible. Dans le cas des réacteurs nucléaires, le matériau fissile est confiné dans un complexe de céramiques qui sera le siège du transfert de flux véhiculant l'énergie de la centrale. A ce titre, les matériaux doivent être de bons conducteurs et conserver cette propriété dans les conditions sévères de haute température et d'irradiation neutronique.

Jusqu'à présent, l'élaboration des composites thermostrostructuraux a été essentiellement guidée par leur tenue mécanique. La réduction des coûts dans l'industrie aéronautique impliquant un allongement de la durée de vie des pièces a permis d'initier récemment des études concernant l'oxydation et la corrosion des composites en environnement sévère. Dans un même élan, la troisième étape doit porter sur l'optimisation des performances thermiques de ces matériaux. C'est dans ce contexte qu'interviennent ces travaux de thèse.

## OBJECTIFS DE L'ÉTUDE

Pour répondre au besoin, en partie formulé par les ingénieurs, il s'agit de comprendre la phénoménologie des transferts thermiques à travers ces milieux complexes. La répartition de la chaleur dans un solide dépendant essentiellement de ses propriétés thermophysiques (conductivité thermique et capacité thermique volumique), la connaissance de ces paramètres est indispensable à l'étude. Les recherches ont été ainsi très naturellement dirigées vers la mise en place de moyens de caractérisation thermique en température au laboratoire.

A l'échelle macroscopique des composites, la conductivité thermique est généralement obtenue de manière indirecte grâce aux mesures de diffusivité thermique par méthodes flash et de capacité thermique effectuées parallèlement par calorimétrie différentielle à balayage (jusqu'à 1200°C) et calorimétrie à chute (jusqu'à 2500°C). L'objectif de notre démarche est d'étudier des voies de caractérisation alternatives, si possible complémentaires.

Ainsi, la prise en compte de l'évolution fondamentale de la métrologie dans notre réflexion, nous a permis d'envisager une méthode de mesure « par contact » fondée sur une expérimentation simple et utilisable par tous. Alors que le coût des capteurs de température précis et sophistiqués (détecteur IR, pyromètres, etc.) reste en effet très élevé, les moyens mobilisables pour la modélisation, l'analyse et le traitement des signaux ont vu au contraire leurs prix s'effondrer et leurs performances se décupler (moyens informatiques). Dans ces conditions, il nous a semblé opportun de développer de nouveaux instruments de mesure en profitant pleinement des compétences « matériaux » du LCTS.

Le résultat attendu est la mise en place d'un dispositif de caractérisation, permettant un accès direct à la conductivité thermique des matériaux composites thermostrostructuraux, en respectant le cahier des charges suivant :

- température maximale de mesure : 1500°C
- plage de conductivité thermique : 1 à 100  $W.m^{-1}.K^{-1}$
- directions de caractérisation : 3 directions de l'espace
- dimensions des échantillons :  $\leq 10$  cm pour les plus conducteurs

Dans une toute autre mesure, le prédimensionnement des composites thermostrostructuraux nécessite des outils capables de simuler leur comportement thermique en condition d'utilisation. Etant donné le large éventail de possibilités dont disposent les industriels pour la conception de ces matériaux (nature des fibres et de la matrice, choix de la structure, etc), il faut en effet pouvoir produire des modèles de comportement, paramétrés par la connaissance des propriétés thermophysiques.

Un autre aspect de la thèse porte ainsi sur le développement d'un code de calcul multiéchelle permettant, à partir des propriétés des constituants élémentaires et de leur arrangement spatial, de calculer la conductivité thermique équivalente de composites thermostrostructuraux stratifiés 2D. Par cette double approche, notre démarche a également pour objectif de montrer l'indispensable complémentarité entre la caractérisation et la modélisation thermique. Nos interrogations sur la représentativité des échantillons en vue de la mesure seront notamment clarifiées par la prévision.

#### **DÉROULEMENT DE L'ÉTUDE - PLAN DU MANUSCRIPT**

Les travaux de conception des instruments de mesure et de caractérisation ont été menés parallèlement aux efforts de modélisation. Ce mémoire de thèse comporte 5 chapitres qui s'articulent de la façon suivante :

Le premier chapitre est l'occasion de familiariser le lecteur aux matériaux composites thermostrostructuraux ainsi que de définir le cadre des techniques de prédiction de la conductivité thermique équivalente. Une revue bibliographique des différents moyens de mesure des propriétés thermophysiques à haute température est ensuite entreprise; celle-ci a pour objet d'exposer entre autre les principales difficultés à surmonter quant à la réalisation des mesures par contact. L'enseignement apporté par ce chapitre permet de dégager véritablement la stratégie adoptée pour la suite de l'étude.

Le second chapitre est entièrement dédié à la modélisation de la conductivité thermique des composites. Il présente la démarche multiéchelle engagée en décrivant chacun des modèles développés. Si la méthode numérique utilisée est familière, sa mise en place ainsi que la description de ses conditions d'application sont originales. Des résultats nouveaux sont obtenus dans le cas d'un composite unidirectionnel et de composites stratifiés 2D. A l'issue du chapitre, une réflexion générale sur la taille des échantillons contribue à justifier le choix de la méthode de caractérisation envisagée pour l'étude des milieux composites.

Le troisième chapitre traite de la démarche expérimentale adoptée pour réaliser la mesure de propriétés thermophysiques des composites à haute température. Dans cette partie, le principe de la mesure est exposé. Une modélisation analytique de l'expérience est réalisée grâce aux quadripôles thermiques pour définir, via une étude de sensibilité, une méthode d'estimation simultanée de la conductivité et de l'effusivité thermique. L'application de la méthode sur différents milieux isotropes et orthotropes est effectuée à température ambiante pour en valider le principe.

Le quatrième chapitre concerne le développement de nouveaux instruments pour la mesure de propriétés thermiques à haute température. La mise au point de capteurs de température linéiques puis de sondes d'excitation résistives en carbone revêtues de faible épaisseur, est présentée dans ce chapitre sous la forme de deux demandes de dépôt de brevet.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre propose de mettre en pratique les instruments et outils numériques développés au cours de l'étude sur deux exemples d'application distincts : (i) la caractérisation thermique d'un composite à température ambiante dont nous confronterons les résultats à ceux obtenus par le calcul, (ii) la caractérisation thermique en température d'un matériau céramique.

# Chapitre 1

## Synthèse bibliographique

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Les matériaux composites . . . . .</b>	<b>17</b>
1.1.1	La diversité des matériaux composites . . . . .	17
1.1.2	Les composites thermostrocturaux : éléments constitutifs et propriétés . . . . .	18
1.1.3	Structures et propriétés des composites thermostrocturaux	23
<b>1.2</b>	<b>Modélisation thermique des composites . . . . .</b>	<b>27</b>
1.2.1	Equation des milieux hétérogènes anisotropes . . . . .	27
1.2.2	Problèmes liés aux hétérogénéités des composites . . . . .	28
1.2.3	Principales méthodes de modélisation . . . . .	32
<b>1.3</b>	<b>Caractérisation thermique à haute température . . . . .</b>	<b>43</b>
1.3.1	Introduction à la mesure de propriétés thermophysiques et classification des méthodes . . . . .	43
1.3.2	Les méthodes sans contact . . . . .	45
1.3.3	Les méthodes avec contact . . . . .	48
1.3.4	Bilan et confrontation des méthodes . . . . .	53
<b>1.4</b>	<b>Conclusion du chapitre et stratégie de l'étude . . . . .</b>	<b>55</b>

---





Un des objectifs de ce premier chapitre est d'apporter une connaissance des matériaux composites par une description intime de leur constitution, de leurs propriétés et de leurs structures. Etant donné l'importante diversité de ces matériaux, il serait aussi hors de propos de se livrer à un exposé complet de tout type de composites. Après avoir cité les grandes catégories, on se limitera donc à décrire précisément les composites thermostructuraux, matériaux de l'étude. Un des objets premiers de la thèse porte sur l'analyse du comportement thermique de ces matériaux, de la connaissance la plus précise des composites dépendra la qualité de la modélisation et de la mesure thermique réalisée.

Un bilan des différentes techniques de prédiction de la conductivité thermique utilisées dans la littérature est établi dans un second temps. Celui-ci permettra d'apprécier les points forts de chacune d'entre elles dont on tirera profit quant à notre propre démarche de modélisation. Une introduction à la mesure expérimentale de propriétés thermophysiques sera enfin l'occasion de montrer tout l'intérêt que nous portons aux moyens de mesure simples et par contact pour la caractérisation thermique de milieux orthotropes en température.

## 1.1 Les matériaux composites

Il est désigné par composite, un matériau constitué d'au moins deux phases non miscibles dont les propriétés individuelles se complètent pour obtenir un nouveau matériau aux caractéristiques globales améliorées, propriétés qu'aucun des constituants pris séparément ne pourrait atteindre [1]. D'une manière générale, un tel matériau comporte (i) un renfort, souvent de nature filamentaire procurant les propriétés de rigidité, (ii) une matrice assurant l'intégrité de la structure, la protection face à l'abrasion ou à la corrosion et la répartition des efforts lors de la sollicitation. Parfois, (iii) une interphase est présente entre les deux.

### 1.1.1 La diversité des matériaux composites

Deux catégories de composites sont distinguées selon leur domaine d'application : les composites de grandes diffusions (GD) qui occupent la plus importante part de marché (95%) et les composites à hautes performances (HP) destinés aux secteurs d'activité à forte valeur ajoutée. Les premiers sont en général des plastiques armés ou renforcés dont le taux de renfort avoisine 30%. Pour la plupart de ces matériaux, l'anisotropie n'existe pas ou n'est pas maîtrisée en raison des renforts utilisés (*fibres courtes*). Le plus souvent, la matrice est résineuse (polyester). Les seconds utilisent en revanche plutôt des *fibres longues* en quantité comparable à la matrice ce qui accroît de manière considérable les propriétés mécaniques du composite. Celles-ci deviennent alors largement supérieures à celles des métaux lorsqu'elles sont rapportées à la masse volumique, contrairement aux GD [2].

Une autre classification de ces matériaux peut être établie selon la nature de la matrice. Dans cette dernière, les composites à matrice organique (CMO) regroupe une large gamme de matériaux élaborés à partir de résines synthétiques thermodurcissable (polyester, époxy, phénoliques,...) et thermoplastiques (polyamides, polypropylène,...). Associés aux fibres de verre ou de carbones pour la majorité, les CMO à résine thermodurcissable présentent de très bonnes caractéristiques chimiques. Leur haute résistance à la fatigue les classe parmi les composites HP. Toutefois, excepté le cas des résines phénoliques qui confèrent aux composites une excellente tenue à la chaleur, la température d'utilisation de ces matériaux n'excède jamais 300°C. La seconde catégorie est celles des composites à matrice métallique (CMM) qui associent un renfort fibreux à un alliage métallique. Ces derniers forment très souvent un matériau multicouche construit sur un empilement plus ou moins complexe de strates homogènes ou non. La résistance accrue à la fissuration et à la propagation de fissures dans les couches minces métalliques leur procure une meilleure tolérance aux dommages. Selon la nature de la matrice, les CMM peuvent être utilisés jusqu'à 400°C (aluminium, magnésium), 650°C (titane) voire 980°C (superalliages base nickel). Les difficultés inhérentes à leur mise en oeuvre ont cependant freiné quelque peu leur utilisation pour des applications en température, ces matériaux restent néanmoins bien présents pour les applications à température ambiante. Enfin, la grande famille des matériaux composites de synthèse est complète si l'on y ajoute les composites à matrice céramique (CMC). Les composites carbone/carbone et carbone/carbure de silicium appartiennent à cette catégorie. Comme les précédents, ceux-ci requièrent des propriétés mécaniques élevées mais ils doivent également faire face à des températures extrêmes comprises entre 600°C et 2000°C voire au delà. Ils sont exclusivement utilisés pour les applications thermostructurales.

### 1.1.2 Les composites thermostructuraux : éléments constitutifs et propriétés

Les céramiques présentent l'avantage d'être réfractaires, chimiquement inertes, légères, très dures et très rigides. Compte tenu de telles propriétés, ces matériaux feraient d'excellents candidats pour des applications à haute température en environnement extrême s'ils n'avaient pas l'inconvénient d'être fragiles. Les systèmes de glissement étant peu nombreux, les céramiques ne possèdent pas de déformation plastique. La rupture est atteinte pour de faibles allongements de l'ordre de 0,1 %. Elles sont de plus très sensibles aux effets d'entailles et aux défauts préexistants qui peuvent conduire prématurément à la ruine brutale du matériau. Afin d'améliorer leur résistance mécanique et pouvoir ainsi prétendre à des applications thermostructurales, les céramiques ont été renforcées par des fibres longues. L'association de ces deux constituants conduit alors à un matériau composite dont le comportement mécanique est de type « pseudo-plastique » [3].

Les performances des CMC ainsi que leurs températures d'utilisation sont directement liées à la nature des constituants. Le choix des taux de renforts et de matrices allié à leurs propriétés intrinsèques permettra l'obtention d'une pièce aux propriétés modulables qui répondra spécifiquement aux besoins formulés lors de sa conception.

### Le renfort fibreux

Les deux types de fibres céramiques les plus répandus sont les fibres à base de carbure de silicium (SiC) et celles de carbone (C). La première présente l'intérêt d'une résistance à l'oxydation jusqu'à des températures supérieures à 1200°C alors que le carbone s'oxyde au-delà de 400°C ; la fibre de carbone conserve néanmoins d'excellentes propriétés mécaniques jusqu'à 2000°C [4] si l'apport d'oxygène est limité. Les fibres de carbure de silicium sont obtenues essentiellement par pyrolyse du polymère organométallique polycarbosilane PCS sous atmosphère inerte. Ce procédé conduit à des fibres de diamètre moyen de 10 à 30  $\mu\text{m}$ . Leur coût très élevé ( $\geq 10\,000$  euros/kg) en limite considérablement leur utilisation.

Les fibres de carbones sont en revanche plus abordables. Elles sont élaborées par carbonisation des trois principaux précurseurs classés ici par ordre croissant de rendement en carbone :

- Cellulose
- Polyacrylonitrile (PAN)
- Brai de pétrole ou de houille, brai synthétique

Etant donné les faibles caractéristiques mécaniques affichées sans post traitement, les fibres ex-cellulosiques ne sont plus utilisées aujourd'hui que pour leurs propriétés d'isolant thermique qui résultent d'une texture très peu orientée [5]. Les fibres ex-PAN présentent quant à elles de haute résistance mécanique (fibres HR :  $E = 150\text{-}300$  GPa,  $\sigma_R = 3000\text{-}7100$  MPa) alors que les fibres de hauts modules (fibres HM :  $E = 400\text{-}950$  GPa,  $\sigma_R = 2000\text{-}3000$  MPa) sont plutôt obtenues à partir du filage à chaud suivi de la carbonisation de brais mésophasiques.

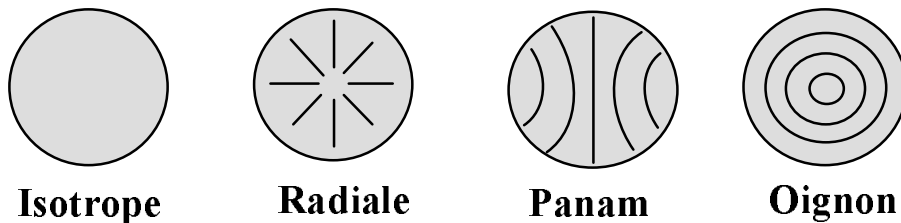


FIG. 1.1 – Différentes textures transverses de fibres de carbone.

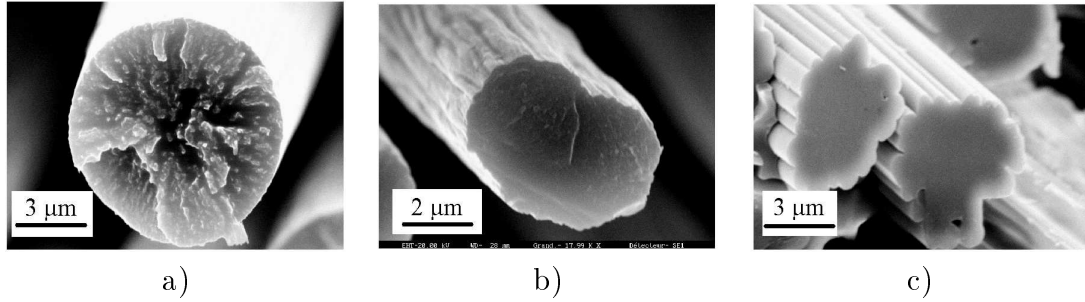


FIG. 1.2 – Observation micrographique de fibres a) ex-braï, b) ex-PAN, c) ex-cellulose.

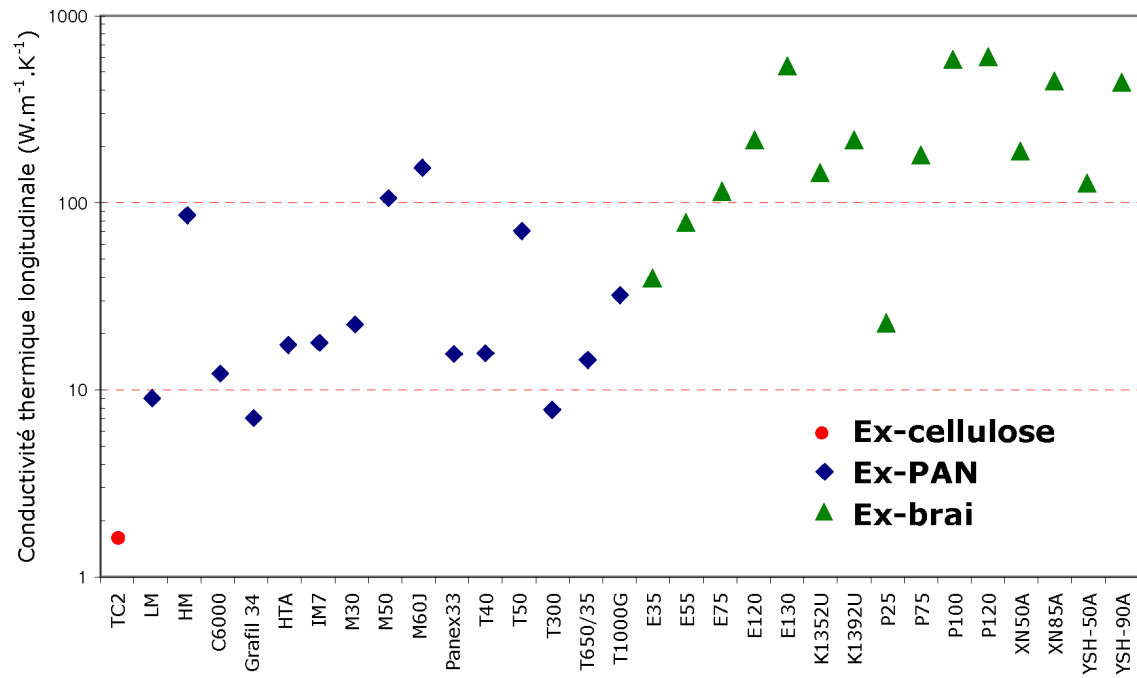


FIG. 1.3 – Conductivité thermique longitudinale de différentes fibres de carbone à température ambiante [6].

**Texture et propriétés** Selon la nature du précurseur utilisé, la texture des fibres diffère : les plans atomiques ont une étendue et une orientation variable qui gouvernent leurs propriétés thermiques. La figure 1.1 illustre le cas particulier des fibres de carbones pour lesquelles quatre familles de texture [7] sont représentées. Il en est de même pour la section. Ainsi les fibres ex-brai (FIG. 1.2a) possèdent une texture radiale avec une section bien circulaire, les fibres ex-PAN (FIG. 1.2b) sont caractérisées par des stries longitudinales en surface et peuvent présenter différentes textures selon le traitement thermique subit, quant aux fibres ex-celluloses (FIG. 1.2c), elles sont généralement reconnaissables à leur section polylobée, que l'on qualifie également de « fleurie ».

La conductivité thermique de ces mêmes fibres peut varier d'un facteur 100 suivant l'organisation du carbone. Cette donnée est importante dans le cadre du prédimensionnement de composite par une approche numérique ; cependant, elle est dans la plupart des études, déterminée de façon indirecte et uniquement à température ambiante. Notre recherche bibliographique a permis de répertorier plus d'une centaine de fibres dont les conductivités thermiques ont été mesurées à cette température. Le graphe de la figure 1.3 présente les résultats de quelques fibres commerciales. La conductivité des fibres ex-brai est globalement plus élevée que celle des fibres ex-PAN, elles mêmes plus conductrices de la chaleur que les fibres ex-cellulose. Plus récemment, la mesure de diffusivité thermique sur monofillement à haute température, bien que difficile à réaliser étant donné les faibles dimensions, a fait l'objet de deux études concluantes [8, 9]. Les méthodes mises en oeuvre sont sans contact. Les propriétés électriques des fibres de carbone, évaluées par leur résistivité, sont également fonction de l'organisation du carbone qui dans la majeure partie des cas est de nature turbostratique. Cet ordre traduit un comportement semi-conducteur de la fibre [10, 4].

## La matrice

Parmi les différentes matrices céramiques utilisées, on trouve des carbures ( $SiC$ ,  $TiC$ ,  $B_4C$ ), des nitrures ( $Si_3N_4$ ,  $BN$ ), des oxydes ( $B_2O_3$ ,  $Al_2O_3$ ,  $ZrO_2$ ), et bien sûr du carbone. Compte tenu de leur faible densité, ces céramiques répondent toutes parfaitement aux exigences de réduction de masse auxquelles font face les industriels actuellement. Une matrice de carbone présente en outre l'avantage de conserver, dans certains cas d'améliorer même, leur résistance mécanique au-dessus de  $1200^\circ C$ , seuil de température où les superalliages commencent à faiblir. Le principal inconvénient d'une telle matrice, déjà soulevé dans le cas des fibres, concerne sa sensibilité à l'oxydation dès  $400-450^\circ C$  qui réduit incontestablement la durée de vie du composite.

La nécessité de disposer alors de matériaux composites pouvant fonctionner à haute température sous atmosphère oxydante a conduit à promouvoir l'utilisation de ma-

TAB. 1.1 – Propriétés thermophysiques de différentes matrices [2, 4, 14, 18].

Matrice	Densité	Dilatation $10^{-6} K^{-1}$	Conductivité $W.m^{-1}.K^{-1}$	Capacité $J.kg^{-1}.K^{-1}$	Temp. limite K
Epoxy 8552	1,30	110	0,22	1000	450
Phénolique	1,18	19	0,40	1050	-
Pyrocarbone	1,7-2,0	$-1^a / 25^b$	$40-70^a / 6-8^b$	715	> 3000
Carbure de silicium (CVI)	3,15	4-5	67-71	-	2300

<sup>a</sup>Direction parallèle aux plans de graphène

<sup>b</sup>Direction perpendiculaire aux plans de graphène

trice à base de carbure [11, 12, 13]. Au même titre qu'une matrice de carbone, le carbure de silicium par exemple concède au composite de très bonnes propriétés mécaniques à haute température mais avec une bien meilleure tenue à l'oxydation. Il est en outre compatible avec le carbone et possède un coefficient de dilatation thermique relativement proche. Les composites à matrice céramique de type C/SiC et C/C-SiC font l'objet d'une grande attention dans le domaine spatial et dans celui du freinage [14, 15]. Dans un même intérêt, il est également à noter l'apparition ces dernières années de nouvelles matrices séquencées que l'on qualifie de « matrice auto-cicatrisantes ». Celles-ci ont la faculté de limiter la fissuration matricielle pour retarder la progression de l'oxygène vers le renfort fibreux en produisant elles-mêmes leurs propres oxydes protecteurs ( $SiO_2$ ,  $B_2O_3$ ,...). Ces nouvelles matrices prennent toute leur dimension dans le cas où le renfort fibreux est en carbone [16, 17].

Le tableau 1.1 propose quelques caractéristiques physiques mesurées à température ambiante, des matrices utilisées dans cette étude.

### L'interphase fibre/matrice

L'interphase est une fine couche de matière (quelques centaines de nanomètres) intercalée entre les fibres et la matrice. Sa place est prépondérante dans le contrôle des propriétés mécaniques du composite puisqu'elle permet le transfert de charge entre les deux parties. La présence d'une interphase fait intervenir des mécanismes consommateurs d'énergie qui ont pour effet d'augmenter la tenacité du matériau. Généralement, elle est constituée de couches fortement anisotropes de carbone pyrolytique ou de nitrure de bore afin de dévier les fissures parallèlement aux fibres [1]. La présence d'une interphase reste toutefois réservée à une minorité de composites. Ceux étudiés dans le cadre de ces travaux n'en comportent pas, l'adhérence résulte directement de l'interpénétration de la matrice et du renfort. A défaut de pouvoir mesurer des résistances thermiques interfaciales, nous ne tiendrons pas compte

des phénomènes thermiques à l'interface fibre/matrice. Pujolà et Balageas [19] ont montré qu'il est néanmoins possible, dans certain cas, d'identifier ces résistances de contact très faibles.

### 1.1.3 Structures et propriétés des composites thermostructuraux

En plus de ses caractéristiques intrinsèques, le renfort fibreux chez les CMC confère au matériau final des propriétés mécaniques bien spécifiques selon son arrangement. Ce dernier, appelé également préforme, constitue l'architecture ou encore la structure du composite. On en distingue quatre catégories [2] :

1. les feutres ou mats, qui sont constitué d'une distribution plus ou moins aléatoire de fibres de faibles longueurs
2. les structures linéaires (1D) ou nappes unidirectionnelles formés par des fils<sup>1</sup> rectilignes disposés parallèlement les uns aux autres
3. les structures multidirectionnelles (2D) dont les plus utilisées sont les structures tissées constituées de deux ensembles de fils s'entrelaçant à angle droit
4. les structures multidimensionnelles (nD) plus complexes, élaborées également à partir de fils alignés cette fois selon plusieurs directions de l'espace.

A l'exception des dernières, toutes ses architectures forment par un empilement successif de couches le composite « stratifié ». C'est l'opération de drapage. Les différentes couches (ou plis) pourront être superposées avec une désorientation ou non. Une représentation normalisée a été mise en place, les orientations les plus fréquemment rencontrées sont représentées sur la figure 1.4a.

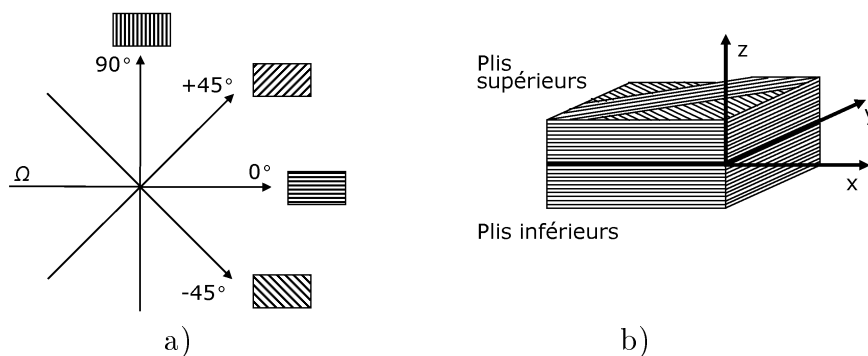


FIG. 1.4 – a) Notation conventionnelle de l'orientation des plis d'un composite stratifié, b) position du plan moyen sur un stratifié équilibré [2].

<sup>1</sup>Un fil est constitué d'un ensemble de fibres pouvant être de longueur finie (filé, fil méché, fil craqué,...) ou infinie (fil continu).



Le plan moyen d'un composite stratifié est celui qui sépare en deux moitiés égales l'épaisseur du multicouche. Sur le schéma (FIG. 1.4b), il s'agit du plan (x,y) qui a pour cote conventionnelle  $z = 0$ . On dit d'un stratifié qu'il est équilibré<sup>2</sup> s'il comporte autant de couches orientées suivant la direction  $+\Omega$  que de couches orientées suivant la direction  $-\Omega$ . Il sera symétrique s'il possède des couches disposées symétriquement par rapport à son plan moyen.

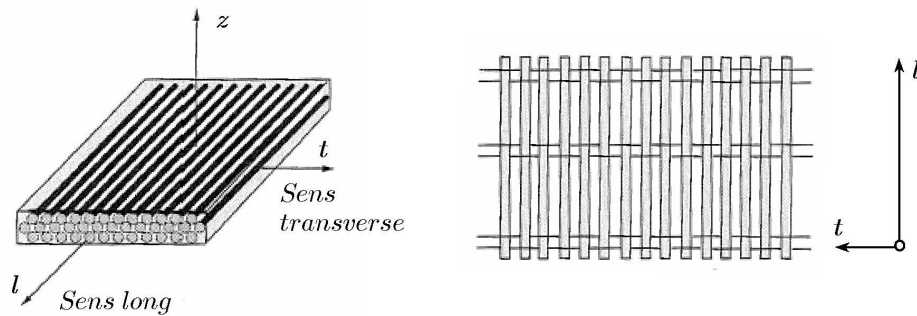


FIG. 1.5 – Tissu unidirectionnel (nappe 1D).

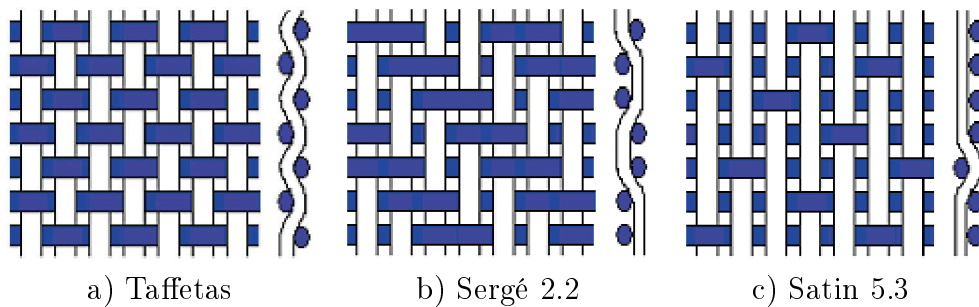


FIG. 1.6 – Principaux tissus bidirectionnels.

---

<sup>2</sup>Un renfort textile 2D sera pour sa part équilibré s'il possède autant de fils de trame (horizontaux) que de fils de chaîne (verticaux), les matériaux constitutifs étant identiques. Vis-à-vis des caractéristiques thermomécaniques, les deux directions joueront dans ce cas des rôles équivalents.

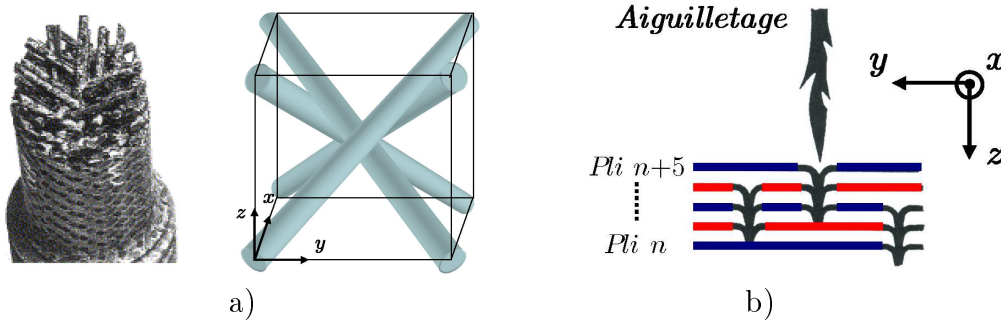


FIG. 1.7 – a) Architecture « 4D » de renfort en carbone, b) Procédé d'aiguilletage Novoltex.

Différentes architectures sont observables sur les figures 1.5 à 1.7. Un pli unidirectionnel (FIG. 1.5) constitué de fils parallèles montre le haut degré d'anisotropie d'une telle structure. Les meilleures propriétés mécaniques sont obtenues dans la direction du renfort. Les trois principaux renforts textiles bidirectionnels qui sont le taffetas, le sergé et le satin sont représentés figure 1.6. L'entrelacement des fils est maximum pour le taffetas, minimum pour le satin. Une architecture « 4D » (FIG. 1.7a) est présentée pour illustrer une structure multidirectionnelle non sujette aux risques de délaminage intra-plis et inter-plis. Pour cette structure, le renfort (des baguettes en carbone pultrudé) est assemblé suivant les quatre diagonales du cube. A défaut, une autre technique astucieuse permettant de limiter ces risques consiste à lier des tissus 2D entre eux, un aiguilletage est alors réalisé [20]. Cette opération est schématisée figure 1.7b. Dans ces conditions, les principaux éléments du renfort sont les fils tissés, orientés dans le plan  $(O,x,y)$  et les aiguilletages, dirigés suivant la direction  $Z$ . Ces exemples ne sont là qu'un aperçu de l'infinie variété des structures tissées utilisées pour la confection des CMC. On ne présente pas ici les structures 2D tricotées, 3D orthogonales ou encore de type interlock largement répandues. Une description complète et détaillée des différentes préformes textiles est donnée par Chou et Ko [21].

**Propriétés thermiques** Les deux tableaux suivants (TAB. 1.2 et TAB 1.3) présentent les caractéristiques thermiques de quelques composites thermostructuraux. Les valeurs répertoriées sont issues de mesures thermiques et sont très disparates selon la nature de la matrice et le type de fibre. Il est important de noter ici que les méthodes mises en oeuvre (détaillées plus loin) ont nécessité des éprouvettes de faibles dimensions soulevant d'ores et déjà un premier problème auquel nous devons faire face : celui de la représentativité de l'échantillon en vue de la mesure.

TAB. 1.2 – Caractéristiques thermiques des composites thermostrostructuraux [22, 23].

Composite	Densité	Dilatation $K^{-1}$	Conductivité $W.m^{-1}.K^{-1}$	Capacité $J.kg^{-1}.K^{-1}$	Temp. limite K
C/C tissé	1,70	$0,8.10^{-6}$	100-150	1420	> 3000
C/C-SiC fibres courtes	2,0 - 2,1	$0,5.10^{-6}$	25 - 40	-	2500

TAB. 1.3 – Caractéristiques thermiques de composites à base de résine phénolique [18].

Type de renfort Nature des fibres	Fibres courtes			Tissu 2D	
	Ex-rayonne	Ex-PAN	Ex-Brai	Ex-rayonne	Ex-PAN
Densité	1,52	1,56	1,51	1,45 à 1,50	1,50 à 1,65
Capacité ( $J.kg^{-1}.K^{-1}$ )	1,25	0,81	1,07	1,07	-
Diffusivité ( $\times 10^{-6}m^2.s^{-1}$ )	0,85	1,0	0,77	1,2 <sup>a</sup> 0,8 <sup>a</sup>	1 à 1,2 <sup>b</sup> 0,6 à 0,8 <sup>b</sup>

<sup>a</sup>Direction parallèle aux plans des plis

<sup>b</sup>Direction perpendiculaire aux plans des plis

*Cette introduction sur les composites et en particulier ceux destinés aux applications à haute température, permet d'apporter une clarification sur la nature, la constitution et les propriétés de ces matériaux. Le but n'étant toutefois pas ici de se livrer à une revue intégrale de ces derniers, le lecteur pourra approfondir ces connaissances avec les références [2, 24, 25].*

## 1.2 Modélisation thermique des composites

Pour étudier le comportement thermique de solides hétérogènes, on se réfère la plupart du temps à des propriétés « effectives », c'est-à-dire apparentes à une certaine échelle d'observation. La méthode, qui consiste à remplacer le milieu complexe, au sein duquel les transferts de chaleur dépendent de chacun des constituants par un milieu homogène aux propriétés globales équivalentes, se révèle parfaitement adaptée pour traiter ces problèmes d'hétérogénéités. Pour un matériau composite, ce procédé s'applique ainsi très naturellement. Bon nombre de travaux ont donné lieu à de multiples modèles de prédictions, plus ou moins approchés selon la précision souhaitée ([22] à [56]). Après une description rapide des éléments et outils de modélisation des matériaux composites, nous nous attarderons à présenter dans cette partie les différentes approches du calcul de conductivité thermique effective que propose la littérature. Pour chaque modèle, en plus des remarques qualitatives, nous évaluerons la capacité du modèle proposé à répondre aux besoins de notre étude. Le schéma général de notre démarche de modélisation sera déduit de ces observations.

### 1.2.1 Equation des milieux hétérogènes anisotropes

La conductivité effective des matériaux composites, matériaux hétérogènes, est définie comme la conductivité d'une région homogène équivalente qui, pour un écart donné de température, autorise le transfert du même flux de chaleur. Pour un milieu continu, indéformable, en l'absence de source de chaleur interne au matériau et en régime stationnaire, cadre de l'étude qui nous intéresse, l'équation de l'énergie s'exprime par :

$$\operatorname{div} \vec{\phi} = \vec{0} \quad (1.1)$$

où  $\vec{\phi}$  représente le vecteur de densité de flux de chaleur. La loi de FOURIER permet de relier cette densité de flux à sa source. Dans le cas général d'un matériau anisotrope, elle s'écrit :

$$\vec{\phi} = -\Lambda \cdot \operatorname{grad} T \quad \lambda_{ij} = \lambda_{ji} \quad (1.2)$$

où  $\Lambda$  représente la matrice symétrique des conductivités thermiques et  $T$  le champ de température.

Ozisk [26] indique qu'il est toujours possible de trouver un repère  $(O_x, O_y, O_z)$  permettant d'écrire le tenseur de conductivité anisotrope sous la forme d'une matrice diagonale. On parlera dans ce cas de tenseur orthotrope. Les directions  $O_x$ ,  $O_y$  et  $O_z$  sont alors appelées directions principales et  $\lambda_x$ ,  $\lambda_y$  et  $\lambda_z$  sont les conductivités principales dans ce référentiel. Hors de ces axes bien sûr, des termes extra-diagonaux apparaissent.

$$\begin{bmatrix} \lambda_{xx} & \lambda_{xy} & \lambda_{xz} \\ \lambda_{yx} & \lambda_{yy} & \lambda_{yz} \\ \lambda_{zx} & \lambda_{zy} & \lambda_{zz} \end{bmatrix} \qquad \begin{bmatrix} \lambda_x & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_y & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_z \end{bmatrix}$$

tenseur de conductivité thermique dans un repère (O,x,y,z) quelconque      tenseur de conductivité thermique dans un repère (O,x,y,z) parallèle aux axes d'orthotropie du milieu

Dans la majeure partie des cas, l'architecture fibreuse des composites thermostructuraux (cf § I.1.3) rend très aisée la détermination des directions principales du matériau. Nous limiterons donc pour cette raison ce travail, à l'étude des propriétés orthotropes.

## 1.2.2 Problèmes liés aux hétérogénéités des composites

### Les différents niveaux d'hétérogénéités

Les échelles d'espace qui doivent être traversées pour l'accès à des propriétés effectives quelles qu'elles soient, sont indiquées par une analyse morphologique du matériau : c'est son organisation spatiale qui dicte la marche à suivre [27]. Pour les composites thermostructuraux, celle-ci fait apparaître différents niveaux d'observation allant du micromètre jusqu'au centimètre. Dans son étude sur la densification des préformes fibreuses, O.Coindreau [28] considère quatre échelles pour décrire intégralement la structure des composites : l'échelle microscopique (ou échelle de la fibre), l'échelle mésoscopique (ou échelle du fil), l'échelle macroscopique (ou échelle du pli) et enfin l'échelle du composite (FIG. 1.8).

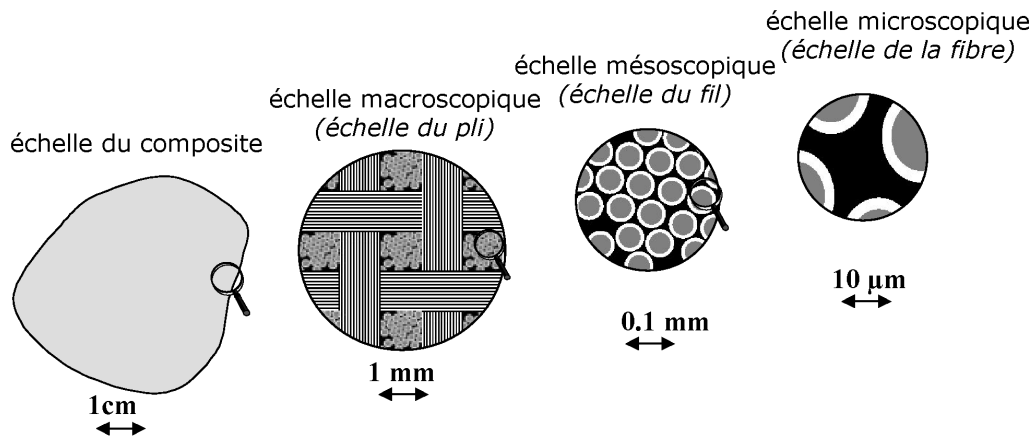


FIG. 1.8 – Les différents niveaux d'observation d'un composite à renfort fibreux [28].

Pour ces quatre niveaux de perception, précisons de quelle manière le transfert de chaleur au sein du matériau peut être influencé.

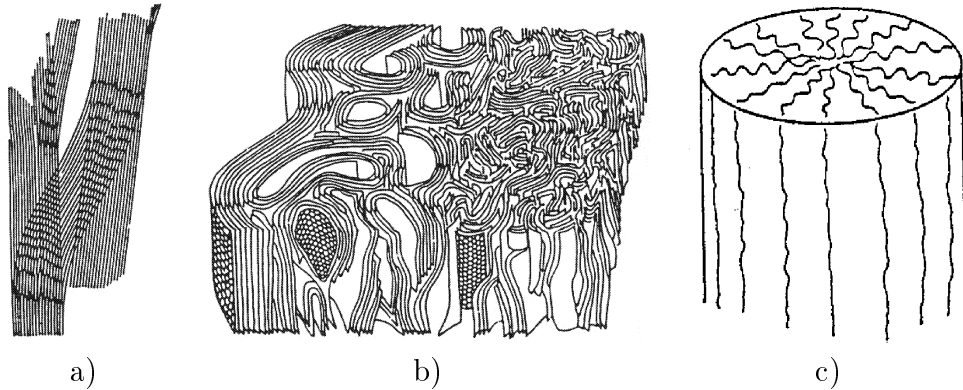


FIG. 1.9 – Modèles de texture a) longitudinale et b) tri-dimensionnelle d'une fibre de carbone ex-PAN [29], c) radiale d'une fibre de carbone ex-brai [30].

**Echelle microscopique** La diversité de texture des fibres (FIG. 1.9) selon leur nature et leur mode d'élaboration, évoquée quelques paragraphes précédents, peut conduire à des directions privilégiées pour le transfert de chaleur. Dans le cas de fibres de carbone, les plans graphitiques possèdent par exemple une extension très grande dans le sens longitudinal. Pour des fibres à texture isotrope, ces plans sont répartis de manière aléatoire dans la section, tandis que pour des fibres à texture radiales, oignon, ou autres, des orientations préférentielles sont présentes. Dès lors, l'anisotropie texturale entraîne une anisotropie des propriétés physiques. Pour la conductivité thermique, la composante perpendiculaire aux plans graphitiques est nettement inférieure (typiquement d'un facteur 5 à 10) à la composante parallèle. Ainsi, pour une fibre à texture radiale par exemple, la conductivité thermique est exprimée sous la forme d'un tenseur à 3 composantes : radiale  $\lambda_{f,R}$ , circonférentielle ou orthoradiale  $\lambda_{f,\theta}$  et longitudinale  $\lambda_{f,L}$  telles que :

$$\lambda_{f,R} \simeq \lambda_{f,L} \geq \lambda_{f,\theta}$$

**Echelle mesoscopique** C'est l'échelle des « fils » qui sont constitués de plusieurs milliers de filaments contenus dans une matrice. Dans le sens longitudinal, leurs propriétés physiques sont celles des fibres. Dans le sens transverse, les propriétés sont isotropes, pilotées par celles des fibres et de la matrice, parfois même par celles de l'interface fibre/matrice. La conductivité thermique à cette échelle est caractérisée par les deux composantes longitudinale  $\lambda_{F,L}$  et transverse  $\lambda_{F,T}$ .

L'arrangement des fibres, leur nombre ou même leur orientation diffèrent selon les composites ; aussi, l'ensemble des chercheurs s'accorde pour souligner l'influence notable de ces trois paramètres sur les valeurs de la conductivité.

Dans son étude du comportement thermique des composites orthotropes, V.Plana [31] montre très clairement, dans sa revue bibliographique, à travers diffé-

rents modèles que les caractéristiques macroscopiques d'un composite UD se révèlent fortement liées à la fraction volumique locale  $\alpha_f$  de fibre (cf §1.2.3) ainsi qu'à leur orientation. Cela est peu étonnant, étant donné le contraste important de conductivités affiché dans la plupart des cas entre les fibres et la matrice.

El Moussali [32], Rocha et Cruz [33], Goyhénèche [34], tout comme d'autres auteurs avant eux [35, 36] ont développé quant à eux leur modèle de prédiction en prenant en compte la distribution des fibres dans le fil. Si l'arrangement aléatoire de fibres est certainement celui qui modélise le mieux le matériau réel, différentes configurations permettent d'approcher de manière beaucoup plus abordable en terme de simplicité de calcul et avec tout autant de précision les valeurs de conductivité. La série de la figure 1.10 montre la diversité des possibilités d'arrangements de fibres présentés dans les modèles proposés par la littérature.

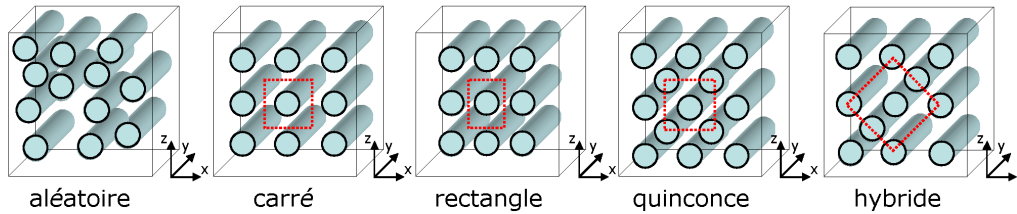


FIG. 1.10 – Différents arrangements de fibres [31].

**Echelle macroscopique** Dans le cas de composite 2D, c'est l'échelle des « plis ». Ceux-ci sont construits par l'enchevêtrement des fils de trame avec les fils de chaîne pour former le tissu à l'origine de l'anisotropie des propriétés à cette échelle. La figure 1.11 représente la tomographie d'un composite à fibre de carbone non densifié, c'est-à-dire non imprégné de la matrice de carbone qui lui est destinée. Sur cette image, l'entrelacement des fils apparaît nettement.

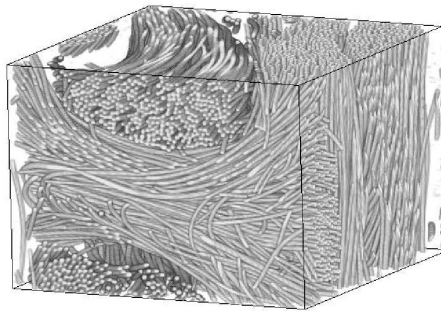


FIG. 1.11 – Tomographie d'un composite carbone/carbone non densifié [28].

Connaissant l'architecture textile du matériau, les directions principales sont très facilement identifiables. Typiquement, pour un composite 2D stratifié élaboré à partir d'un empilement de plis tissés, les directions de tissage chaîne/trame (x,y) et

la direction (z) perpendiculaire au plan des plis forment le repère orthogonal des directions principales. On obtient ainsi dans le cas de la conductivité thermique, un tenseur à trois éléments :  $\lambda_{P,x}$ ,  $\lambda_{P,y}$  et  $\lambda_{P,z}$  telles que :

$$\lambda_{P,x} \simeq \lambda_{P,y} \gg \lambda_{P,z}$$

car la composante longitudinale des fils est généralement bien plus élevée que la composante transverse. On note alors :

$$\lambda_{P,\parallel} = \lambda_{P,x} = \lambda_{P,y} \quad \text{et} \quad \lambda_{P,\perp} = \lambda_{P,z}$$

**Echelle du composite** Enfin, l'échelle du composite qui englobe l'association plus ou moins complexe des disparités fibres, fils et plis. De la même manière qu'à l'échelle précédente, trois composantes principales constituent le tenseur de conductivité thermique dans le repère parallèle aux axes d'orthotropie du matériau :  $\lambda_{C,x}$ ,  $\lambda_{C,y}$  et  $\lambda_{P,z}$ . Bien souvent pour un stratifié, on remarquera que la désorientation moyenne entre les plis de même épaisseur est nulle. Dans ce cas très précis, la recherche du tenseur de conductivité thermique du composite revient alors simplement à rechercher le tenseur à l'échelle inférieure puisque celui-ci devient alors identique (cf Chapitre 2).

En définitive, l'enseignement apporté dans cette partie, nous amène aux conclusions suivantes. Si l'on souhaite que les propriétés thermiques à l'échelle du composite intègre bien (i) l'ensemble des hétérogénéités présentes, associées à leurs propriétés respectives ainsi que (ii) l'effet de la microstructure sur le transfert thermique, notre étude doit s'appuyer sur une technique d'homogénéisation multiéchelle.

### **Le concept d'homogénéisation**

Lorsqu'on se place du point de vue macroscopique, il est intéressant de prédire les propriétés moyennes de tels matériaux en les remplaçant par un matériau homogène équivalent et d'en étudier la réponse thermique au niveau macroscopique sans se soucier de détails microscopiques. La théorie de l'homogénéisation répond à cette attente. Dans le cadre d'hypothèses d'homogénéisation plausibles, elle permet d'établir de manière rigoureuse les propriétés moyennes équivalentes de corps hétérogènes.

D'une façon très générale, on dit d'un matériau hétérogène qu'il est homogénéisable d'un point de vue thermique si le milieu homogène équivalent satisfait les points suivants : il doit obéir à la loi de Fourier et respecter les bilans thermiques. Le comportement du matériau homogène doit être équivalent à celui du matériau hétérogène lorsque les deux solides sont soumis aux mêmes sollicitations.



Plusieurs auteurs se sont penchés sur la question de savoir si les composites faisaient partie ou non de cette catégorie de matériaux homogénéisables. Pour y répondre, J.L. Auriault [37] affirme qu'il faut que le rapport de taille entre les hétérogénéités et le milieu considéré soit très inférieur à l'unité. A. Luc et D. Balageas [38] arrivent aux mêmes conclusions en indiquant que lorsque les dimensions impliquant le transfert de chaleur sont trois à quatre fois plus grandes que les distances inter-renforcement, le milieu peut être assimilé à un matériau homogène.

L'un des objectifs de ce travail de modélisation est de pouvoir prédire les conductivités macroscopiques d'une certaine catégorie de composites, les CMC, afin de pouvoir notamment valider nos points de mesures. Les différents échantillons en notre possession montrent des tailles caractéristiques d'hétérogénéités très inférieures à la taille des plaques manipulées (d'une centaine de microns pour les renforts fibreux à quelques centimètres pour l'échantillon). Par conséquent, l'hypothèse d'homogénéisation semble ici être satisfaite. Tout l'enjeu pour évaluer la conductivité thermique effective globale repose maintenant sur la technique d'intégration, directement liée à la description géométrique du matériau.

### 1.2.3 Principales méthodes de modélisation

Toutes font appel au concept d'homogénéisation dont la finalité va être de relier les matrices des conductivités locales à la matrice de conductivité thermique effective globale.

#### Les méthodes à dominante mathématique

Le premier type d'approche qui nous vient naturellement consiste en une résolution mathématique de l'équation de la chaleur appliquée au milieu hétérogène. L'utilisation de transformations mathématiques telles que les transformées de Laplace permet la modification du système d'équations en un système linéaire nécessaire pour résoudre le problème thermique. Plusieurs auteurs se sont ainsi penchés sur ce type de résolution, c'est le cas notamment de Houlbert [39] qui utilise en régime instationnaire le formalisme des quadripôles thermiques [40] pour déterminer les propriétés thermophysiques de parois composites opaques. D'autres auteurs [41, 42] utilisent également des outils similaires permettant une bonne compréhension des mécanismes de transfert de chaleur, pour en déduire des caractéristiques effectives. Cependant, on reprochera à cette approche une trop forte utilisation des mathématiques, qui en limite les applications. Chaque problème, en fonction des conditions aux limites, de l'architecture du milieu doit en effet faire l'objet d'une étude spécifique pour déterminer la manipulation adéquate des équations. Cette analyse préalable rend alors impossible toute mise en place

d'un schéma systématique d'évaluation de propriétés effectives.

Une autre utilisation des mathématiques inspirée de la théorie d'inclusion d'Eshelby [43] a conduit aux développements de méthodes présentées dans le rapport d'étude [44] qui s'intéressent cette fois aux composites particulières à inclusions sphériques. Leur principe consiste à noyer des particules homogènes ou non, dans un milieu de conductivité inconnue. Toutes s'appuient sur un même schéma général. Le composite, assujéti à des conditions aux limites homogènes, est soumis à l'intensité  $H_i$  et aux flux de chaleur  $q_i$  :

$$H_i = -\frac{\partial T}{\partial x_i} \quad q_i = \lambda_{ij} H_j \quad (1.3)$$

où  $\lambda_{ij}$  est le tenseur symétrique des conductivités thermiques d'un matériau homogène anisotrope. La condition aux limites fixée s'exprime alors par :

$$T(S) = -H_i^\circ x_i \quad (1.4)$$

où S est la frontière extérieure et  $H_i^\circ$  la constante d'intensité. La conductivité effective est finalement obtenue par une moyenne volumique :

$$\langle q_i \rangle = \lambda_{ij}^* \langle H_i \rangle \quad (1.5)$$

On suppose ici une distribution aléatoire des phases, entraînant l'isotropie du composite. L'indice 1 désigne la matrice, les différentes phases sont repérées par l'indice  $r = 2 \dots N$ . En notant  $\lambda_r$  la conductivité de la  $r^{ime}$  phase, le caractère homogène de la condition aux limites permet alors d'écrire :

$$\lambda_{ij}^* H_j^\circ = \lambda^* \delta_{ij} H_j^\circ = \lambda^* H_i^\circ = \lambda_1 H_i^\circ + \sum_{r=2}^N (\lambda_r - \lambda_1) \cdot \alpha_f^r \langle H_i^r \rangle \quad (1.6)$$

où  $\langle H_i^r \rangle$  représente la moyenne de l'intensité dans la  $r^{ime}$  phase.

L'ensemble des modèles d'inclusions adopte ce schéma en s'attachant à la détermination de cette moyenne d'intensité dans chaque phase r. Ils se distinguent les uns des autres par la prise en compte ou non des interactions entre particules [45] qui peuvent être de géométrie ou de nature variable [46]. Nous nous limiterons dans cette revue bibliographique simplement à en signaler l'existence car ces multiples modèles nous emmèneraient trop loin dans des considérations mathématiques ardues. En outre, les méthodes d'inclusion sont réduites à la description de la conductivité thermique effective de composites particuliers isotropes. Il paraît donc difficile d'envisager une généralisation de celles-ci à des composites stratifiés quelconques. Par contre, elles peuvent être employées pour la détermination de conductivité thermique équivalente de matrice chargée.

## Les modèles analytiques

Une seconde approche fait appel à l'écriture de formes analytiques souvent empiriques plus explicites et plus souples d'utilisation. Aussi, étant donné la complexité souvent présentée par les architectures composites, cette catégorie de méthodes s'adresse principalement aux composites unidirectionnels. Les relations restent toutefois bien valables à l'échelle du fil pour la détermination de la conductivité thermique dans le cas de composites bi ou multidirectionnelles.

**Conductivité thermique longitudinale** La détermination de la conductivité thermique longitudinale  $\lambda_L$  est universellement reconnue par l'utilisation d'un simple modèle de calcul parallèle [47] où  $\alpha_f$ ,  $\lambda_{f,L}$  et  $\lambda_m$  représente respectivement la fraction volumique de fibre, la conductivité longitudinale des fibres et celle de la matrice :

$$\lambda_L = \alpha_f \lambda_{f,L} + (1 - \alpha_f) \lambda_m \quad (1.7)$$

Si cette simple relation conduit à de très bons résultats, il n'est pas aussi trivial d'obtenir la composante transverse.

**Conductivité thermique transverse** Le modèle analytique le plus élémentaire pour obtenir cette grandeur  $\lambda_T$  considère deux phases que l'on associe en série sans se soucier de leur arrangement ni de leur géométrie. Le résultat d'une telle hypothèse conduit à l'expression :

$$\lambda_T^{RES} = \frac{\lambda_m \lambda_{f,T}}{\alpha_f \lambda_m + (1 - \alpha_f) \lambda_{f,T}} \quad (1.8)$$

où  $\lambda_{f,T}$  est la conductivité transverse des fibres et  $\alpha_f$  la fraction volumique de fibres dans le milieu.

Le problème de la conductivité effective transverse d'un arrangement carré de cylindres à conductivité isotrope a été étudié très tôt par L.Rayleigh [35] qui propose un premier modèle analytique valide pour les faibles fractions volumiques de fibres :

$$\lambda_T^{RAY} = \lambda_m \frac{(1 - \alpha_f) \lambda_m + (1 + \alpha_f) \lambda_{f,T}}{(1 - \alpha_f) \lambda_{f,T} + (1 + \alpha_f) \lambda_m} \quad (1.9)$$

Celui-ci a été repris par la suite par Behrens [48], Ashton [49] puis Pilling [50] sous des formulations rigoureusement équivalentes.

Hashin [51] tout comme Bigaud, Goyhénèche et Hamelin [52] donnent quant à eux préférence dans leurs travaux, au modèle de Bruggeman [53] (ou Clayton) qui s'appuie sur les mêmes hypothèses :

$$\lambda_T^{BRU} = \frac{1}{2}\lambda_m \left[ (1 - \alpha_f)^2 \left( \frac{\lambda_{f,T}}{\lambda_m} - 1 \right)^2 + 2 \frac{\lambda_{f,T}}{\lambda_m} - \sqrt{\left[ (1 - \alpha_f)^2 \left( \frac{\lambda_{f,T}}{\lambda_m} - 1 \right)^2 + 2 \frac{\lambda_{f,T}}{\lambda_m} \right]^2 - 4 \left( \frac{\lambda_{f,T}}{\lambda_m} \right)^2} \right] \quad (1.10)$$

Ces deux dernières relations sont réduites à un arrangement particulier et ne sont pas généralisables. Le cas d'arrangement régulier de fibres (carré et hexagonal) ou aléatoire a été traité par Nielsen [54] entre autre, qui établie une relation issue d'une analogie aux modules élastiques :

$$\lambda_T^{NIEL} = \lambda_m \frac{1 + \frac{A-1}{2A+1}\alpha_f}{1 - 2\alpha_f \frac{A-1}{2A+1} - \frac{1-\psi_m}{\psi_m^2}\alpha^2} \quad (1.11)$$

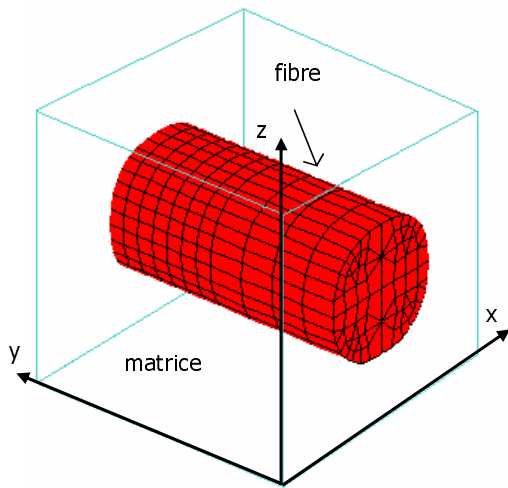
en posant  $A = \frac{\lambda_{f,T}}{\lambda_m}$  et avec  $\psi_m$  :

- pour un arrangement carré de fibre,  $\psi_m = 0,785$
- pour un arrangement hexagonal de fibre,  $\psi_m = 0,907$
- pour un arrangement aléatoire de fibre,  $\psi_m = 0,820$

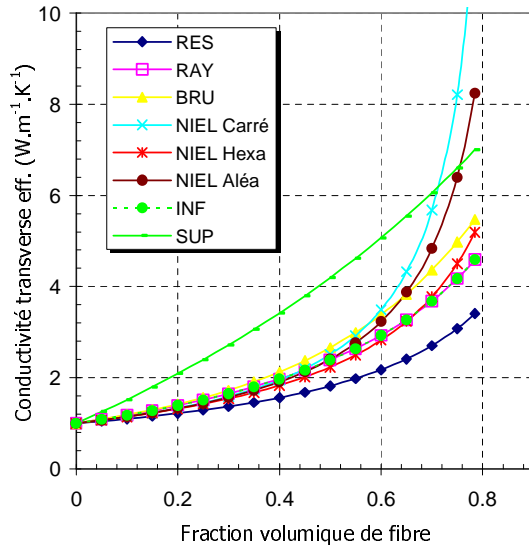
Enfin, une dernière technique d'évaluation consiste à établir un encadrement de la valeur. Hashin et Strickman [51] proposent ainsi de borner la conductivité effective transverse d'un composite formé de N phases distribuées aléatoirement de façon à obtenir l'isotropie du composite. Si l'on considère ici uniquement les deux phases fibre et matrice, nous obtenons alors l'expression :

$$\lambda_T^{INF} \leq \lambda_T \leq \lambda_T^{SUP} \text{ avec : } \lambda_T^{INF} = \lambda_m \frac{1 + A + (A-1)\alpha_f}{1 + A - (A-1)\alpha_f} \text{ et } \lambda_T^{SUP} = \lambda_{f,T} \frac{1 + A - (A-1)(1 - \alpha_f)}{1 + A + (A-1)(1 - \alpha_f)} \quad (1.12)$$

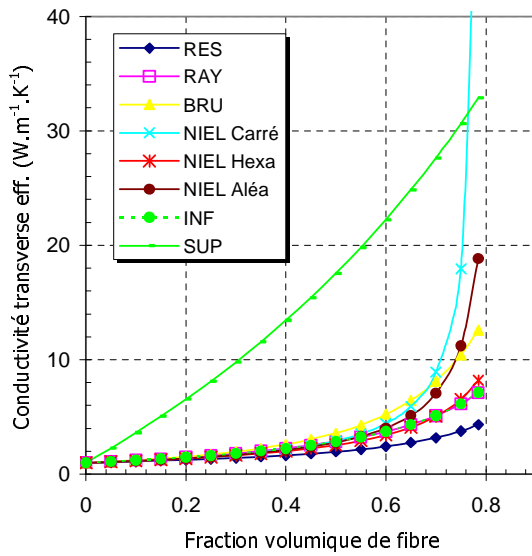
La figure 1.12 rassemble les résultats de calculs provenant des solutions analytiques exposées en fonction de la fraction volumique de fibres. La conductivité de la matrice est fixée à 1, trois rapports de conductivité ont été choisis pour illustrer le comportement des différentes corrélations.



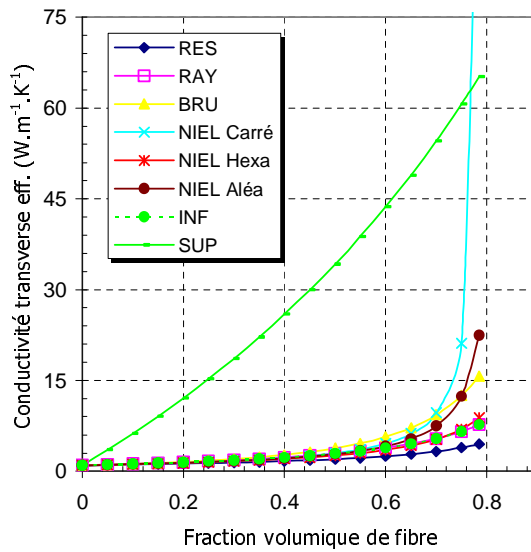
a) Cellule considérée pour le calcul



b) Rapport  $\lambda_{f,T}/\lambda_m = 10$



c) Rapport  $\lambda_{f,T}/\lambda_m = 50$



d) Rapport  $\lambda_{f,T}/\lambda_m = 100$

FIG. 1.12 – Comparaison des différentes corrélations pour le calcul de la conductivité thermique transverse effective.

La tendance observée est identique quelque soit le rapport  $\lambda_{f,T}/\lambda_m$ . Pour une fraction volumique de fibres inférieure à 30 %, tous les modèles à l'exception de la borne supérieure de Hashin, aboutissent au même résultat. Dans cet intervalle, les fibres interagissent peu les unes avec les autres. En d'autres termes, le champ de température sur une fibre ne dépend pas de la présence des autres. Leur comportement, à la base de tous les modèles exposés, est celui que la fibre aurait si elle était seulement entourée de matrice. Au-delà de 30 %, l'utilisation d'un modèle série donne la limite basse de la conductivité transverse, en dessous même de la borne inférieure de Hashin. De toute évidence, ce dernier ne semble pas constituer une solution satisfaisante pour la modélisation. Les autres formulations conduisent à des résultats voisins jusqu' à un taux de fibre de 60 %, mais à priori aucune d'entre elles ne peut se prévaloir d'être la plus précise. En particulier, pour les fortes fractions volumiques, toutes les solutions s'écartent. Seule une comparaison avec des données expérimentales pourrait départager ces différentes expressions.

### Les assemblages d'éléments géométriques

Face aux difficultés liées à la description d'architecture complexe, la prédiction des propriétés thermiques des composites peut également être envisagée par une approche fondée sur l'assemblage « *d'éléments géométriques simples* ». Une décomposition des structures en diverses cellules élémentaires représentatives (ou très proches) de chacun des constituants homogènes du matériau est alors opérée. Par analogie électrique <sup>3</sup>, ces éléments, imbriqués les uns dans les autres, vont constituer un réseau tridimensionnel de résistances thermiques. Un des exemples les plus simples d'application est présenté par Kulkarni et Brady [55] qui s'intéressent à la conductivité effective d'un composite stratifié, formé de N plis empilés selon des angles variables dans le plan. Les conductivités thermiques sont exprimées, pour chaque couche, de manière empirique dans leur repère propre puis dans celui du composite. C'est le couplage en série des résistances thermiques associées qui conduit au final, au tenseur de conductivité effectif du composite (FIG. 1.13).

$$\lambda_{C,x} = \frac{\sum_{i=1}^N \lambda_{xi} \delta_i}{\sum_{i=1}^N \delta_i} \quad \lambda_{C,y} = \frac{\sum_{i=1}^N \lambda_{yi} \delta_i}{\sum_{i=1}^N \delta_i} \quad \lambda_{C,z} = \frac{\sum_{i=1}^N \lambda_{zi} \delta_i}{\sum_{i=1}^N \delta_i} \quad (1.13)$$

où  $\delta_i$  représente l'épaisseur du pli i.

<sup>3</sup>Le potentiel thermique T est assimilé au potentiel électrique E, le flux de chaleur  $\Phi$  au courant électrique I et la résistance thermique  $R_{th}$  à la résistance électrique  $R_{lec}$ . Dans ces conditions, la loi de Fourier  $\Phi = \Delta T / R_{th}$  équivaut à la loi d'Ohm  $I = \Delta E / R_{lec}$  et les résistances thermiques peuvent être exprimées analogiquement par la relation  $R_{th} = L / \lambda.S$ , L et S étant respectivement les longueurs et surfaces d'échange du transfert thermique.

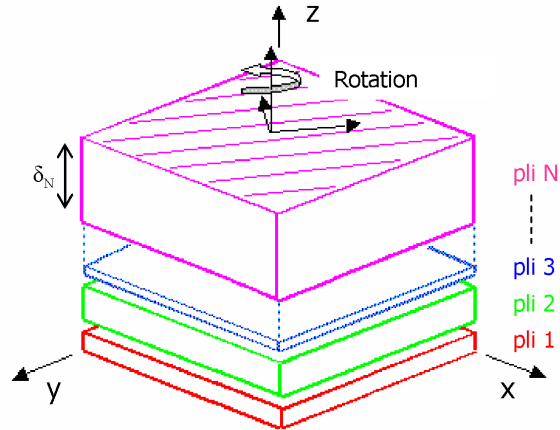


FIG. 1.13 – Représentation d'un composite stratifié.

D'autres utilisations de l'analogie électrique, plus intéressantes par leur étendue, s'attachent à la détermination des conductivités effectives de cellules unitaires représentatives de différents renforts textiles tissés 2D. C'est le cas notamment des modèles écrits par Ning et Chou qui traitent le cas du taffetas [56] et des satins [57]. La géométrie simple de chaque élément de la cellule permet d'établir l'expression d'une résistance thermique. Une fois assemblée aux autres, celle-ci conduit à une résistance équivalente dont les auteurs déduisent la propriété recherchée (FIG. 1.14).

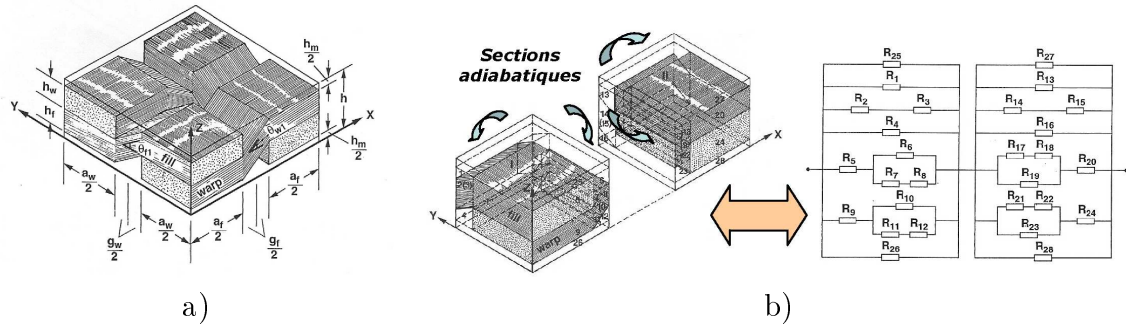


FIG. 1.14 – a) Cellule unitaire idéalisée de la structure taffetas considérée par Ning et Chou [56], b) demi-cellule unitaire associée à son réseau de résistances thermiques.

Les conductivités thermiques effectives planes et transverses sont ainsi explicitement exprimées en fonction des paramètres géométriques de la cellule que sont la fraction volumique de fibres  $\alpha_f$  et l'orientation des fils  $\theta$ . Ces expressions sont relativement lourdes mais elles présentent l'avantage de ne faire intervenir que des opérations algébriques simples. L'originalité de cette démarche réside en outre dans la prise en compte possible du caractère anisotrope des fibres. On pourrait alors imaginer une extension plus large encore de ces modèles pour leur permettre la ca-

ractérisation de structures plus complexes. Néanmoins, en dehors de l'absence de considération apportée aux résistances de contact interfacial, la génération des expressions littérales nécessite d'introduire au sein même de la cellule unitaire, des sections adiabatiques fictives de manière à simplifier les expressions (FIG. 1.14b). Les fils, ainsi virtuellement sectionnés, ne seraient donc pas le sein d'échange de chaleur le long de leurs fibres entre deux parties découplées. La réalité physique d'une telle hypothèse semble difficile à justifier. La représentation des tissus reste de plus assez grossière et parfois loin du matériau authentique.

### Les modèles numériques

Les progrès réalisés ces dernières années quant à la performance des outils informatiques ont ensuite orienté les recherches vers des résolutions numériques généralisées, étendues à la modélisation géométrique. Ainsi, on préfère sans ambiguïté la prédiction proposée par Dasgupta et al. [58] au modèle précédent, qui traite des mêmes textures stratifiées 2D par la *méthode des éléments finis*. D'une façon similaire, il dégage une cellule unitaire caractéristique des architectures taffetas qu'il maille finement de manière à être le plus représentatif (FIG. 1.15). L'auteur résout alors numériquement le problème thermique sur cette portion, puis exploite sa périodicité pour en déduire le tenseur de conductivité effective du composite.

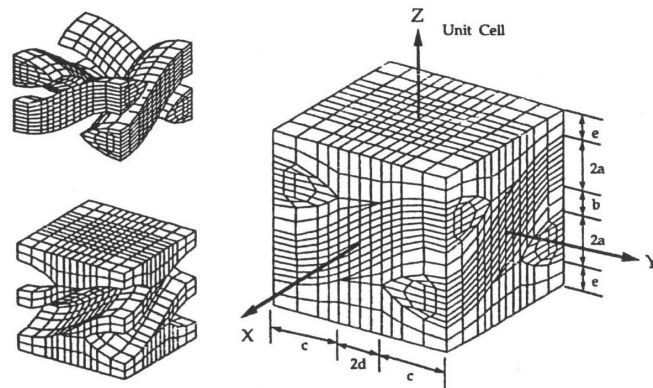


FIG. 1.15 – Maillage (fil et matrice) de la cellule unitaire considérée par Dasgupta et al. [58].

Goyhénèche [59] a utilisé le même principe pour atteindre les propriétés effectives d'architectures textiles variées à l'exception près qu'il procédait à deux étapes d'homogénéisations au lieu d'une pour Dasgupta et al.. L'erreur alors engendrée sur les résultats se traduisait par des écarts avec les points de mesure. Ce dernier aspect sera repris et développé plus en détail dans le chapitre 2 car il est un des éléments majeurs de notre stratégie de modélisation fine des composites thermostructuraux stratifiés.



Une autre catégorie de modèles est à mettre à l'actif de l'avènement de moyens de calculs numériques performants. Ceux-ci sont fondés sur l'analyse discrète d'images adjointe à une mise en corrélation des flux et gradients. En général, on a recours à des techniques de volumes finis, de différences finies et d'éléments finis, ou encore au gaz sur réseau [60]. Ce type de démarche est dû à D. Staicu [61] qui l'a développée dans le cas d'un défaut d'adhérence entre inclusions et matrice ; le calcul nécessitant alors une analyse fine de l'image 2D (détection de contours). Elle a été ensuite appliquée à plusieurs types de milieux hétérogènes.

Dans le cas d'une architecture composite multidirectionnelle, une procédure de détermination de la conductivité effective s'appuyant désormais sur une image 3D est décrite par Coindreau [28] (FIG. 1.16). Après la sélection d'un volume d'une centaine de voxels de côté, l'auteur propose de le découper en sous ensembles dans lesquels la porosité ( $\epsilon$ ) et l'orientation des fibres sont déterminées (1). En supposant que ces dernières peuvent être modélisées localement par des cylindres parallèles contenus dans une matrice, un tenseur de conductivité est alors affecté à chaque sous volume dans son repère propre (2) :

$$[\mathbf{\Lambda}]^\circ = \begin{bmatrix} \lambda_\perp & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_\perp & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_\parallel \end{bmatrix}$$

Connaissant ensuite le champ de conductivité à l'intérieur du volume complet, la conductivité effective est calculée par prise moyenne volumique à grande échelle (3).

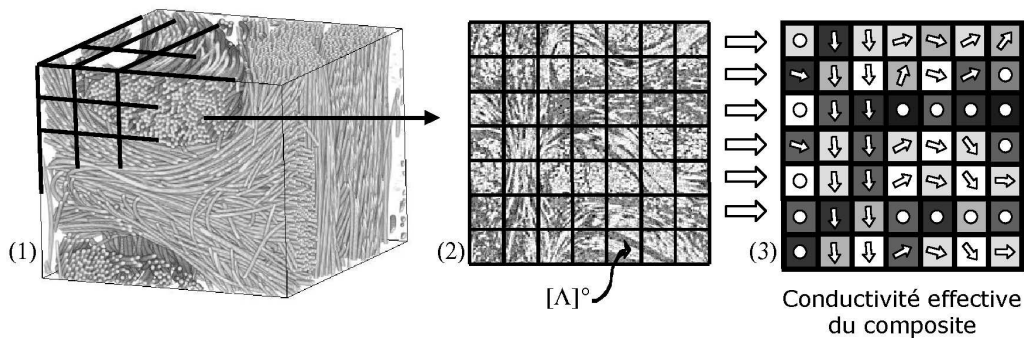


FIG. 1.16 – Représentation schématique des différentes étapes du calcul de la conductivité effective à partir d'une image 3D.

### Conclusion et démarche de modélisation adoptée

La diversité des modèles qui s'offrent à nous pour la prévision des propriétés thermiques est importante, notre revue bibliographique en témoigne. Mais si la plupart d'entre eux s'avère très pertinents, aucun ne permet réellement de retracer l'ensemble des niveaux d'hétérogénéités des composites en une même opération.

La solution que nous avons alors envisagée pour mener à bien cet exercice va s'appuyer sur une stratégie multiéchelle avec séparation stricte des échelles (FIG. 1.17). La connaissance des propriétés à l'échelle des fibres (microscopique) permettra d'aborder la description de l'échelle supérieure, en l'occurrence celle des fils (mésoscopique) : c'est ce que nous qualifierons dans ces travaux de « *premier changement d'échelle* ». Puis l'obtention des propriétés effectives macroscopiques s'accompagnera d'un « *second changement d'échelle* ». En partant cette fois des données relatives à l'échelle mésoscopique, celles-ci permettront d'identifier le tenseur de conductivité effectif à l'échelle du pli, voire à l'échelle du composite dans certaines conditions. Le cas échéant, un « *troisième changement d'échelle* » sera nécessaire.

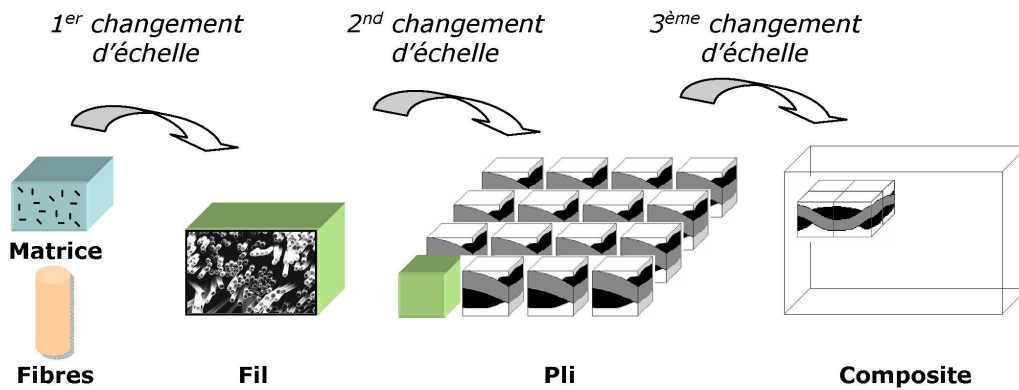


FIG. 1.17 – Démarche multiéchelle retenue.

Le tableau 1.4 rassemble les catégories de méthodes exposées dans cette partie en rappelant leurs principales caractéristiques. Le choix des modèles retenus et appliqués dans notre étude est présenté puis discuté dans le chapitre 2.

TAB. 1.4 – Principales caractéristiques des modèles et méthodes présentés.

	<b>Architecture composite</b>	<b>Texture du renfort</b>	<b>Domaine d'étude</b>	<b>Particularités</b>
<i>Transformations mathématiques</i>	Simple	Isotrope	-	Résolution spécifique à chaque problème
<i>Modèles à inclusion</i>	Particulaire	Isotrope	-	Généralisation à une structure textile difficile
<i>Modèles analytiques</i>	Comp. UD	Anisotrope	Motif périodique représentatif	Simple de mise en oeuvre
<i>Analogie électrique</i>	Stratifiés 2D	Anisotrope	Motif périodique représentatif ou milieu complet	Souple d'utilisation, attention aux CL
<i>Eléments finis</i>	Quelconque	Anisotrope	Motif périodique représentatif	Flexibilité, description des géométries excellente
<i>Analyse d'image</i>	Quelconque	Anisotrope	V.E.R.	Bonne description des milieux

## 1.3 Caractérisation thermique à haute température

La caractérisation thermique des matériaux massifs à température ambiante est une discipline bien maîtrisée depuis de nombreuses années [62]. Lorsque que l'on a à faire à des milieux hétérogènes, la mesure devient plus délicate car il faut alors s'interroger sur la représentativité du milieu : l'échantillon contient-il la même proportion de phases que le matériau à caractériser ? Ces phases sont-elles réparties de manière homogène ? Le matériau est-il isotrope ? Autant de questions souvent difficiles à aborder mais qui sont nécessaires à l'étude de ces milieux.

A haute température, des difficultés supplémentaires viennent alourdir davantage cet exercice. Outre la multiplicité des modes de transfert de chaleur auquel nous devons faire face (conduction, convection et rayonnement), les principaux problèmes résident dans l'intégrité des capteurs employés et dans les éventuelles interactions chimiques entre l'échantillon et les éléments du dispositif de caractérisation [63]. La problématique n'est donc plus tout à fait la même lorsqu'on se place en température ; et si bon nombre de moyens et méthodes de caractérisation thermiques existent à température ambiante, ceux-ci se font de plus en plus rares quand les plages de températures visées sont élevées.

Dans le développement qui suit, nous recensons de façon succincte la variété des méthodes de mesure des propriétés thermophysiques applicables en température (de 300°C jusqu'au delà de 2000°C). L'objectif est ici de clarifier les avantages et inconvénients de chacune d'entre elles.

### 1.3.1 Introduction à la mesure de propriétés thermophysiques et classification des méthodes

Afin de déterminer les propriétés thermophysiques d'un corps, ou plus globalement de tout système assimilé, il est nécessaire de créer un déséquilibre thermique du milieu qui peut être stationnaire ou non selon la méthode employée. L'analyse de la réponse en température conduit ensuite à l'identification des grandeurs (FIG. 1.18). Il pourra s'agir de :

- la conductivité thermique  $\lambda$ , qui caractérise l'aptitude du milieu à conduire la chaleur
- la capacité thermique volumique ( $\rho.c_p$ ), qui traduit le pouvoir du milieu à emmagasiner l'énergie

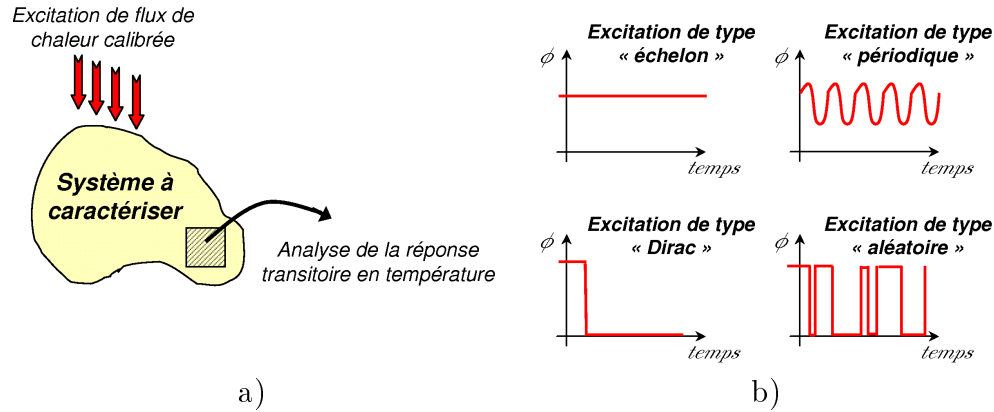


FIG. 1.18 – a) Principe général de la mesure de propriétés thermophysiques en régime instationnaire - b) quatre principaux modes de perturbation thermique associés.

D'autres paramètres peuvent également être quantifiés comme la diffusivité thermique  $a$  et l'effusivité thermique  $E$  définies par les relations suivantes :

$$a = \frac{\lambda}{\rho c_p} \quad \text{et} \quad E = \sqrt{\lambda \rho c_p} \quad (1.14)$$

**Estimation des grandeurs** L'estimation de propriétés thermophysiques consiste à établir un modèle mathématique du problème direct du transfert de la chaleur dont on compare les résultats à la mesure expérimentale de la température (cf méthode inverse [64]).

L'écriture de ce modèle contraint à préciser la géométrie du système, les conditions aux frontières à appliquer ainsi que la répartition initiale du champ de température si celui-ci ne s'effectue pas en régime permanent, ni établi. Cet ensemble de conditions définit une forme simplifiée de l'équation de la chaleur et des conditions aux limites (CL). Bien souvent, plusieurs hypothèses simplificatrices sont formulées pour aboutir à cette solution. Pour divers raisons, ces hypothèses ne sont qu'imparfaitement réalisées lors de l'expérience (difficulté d'imposer des conditions aux limites parfaitement définies, imprécision sur la position des capteurs, etc). Il en découle alors une erreur systématique qu'il est difficile d'évaluer. Pour cette raison, un des enjeux de l'identification repose sur la description la plus précise de l'expérience en utilisant des outils mathématiques simples et appropriés.

**Les grandes classes de méthodes** Pour classifier les nombreuses méthodes de mesure, différents critères sont envisageables. Le plus naturel consiste à réaliser deux grands groupes : (i) les méthodes en régime permanent où le temps n'intervient

pas et (ii) les méthodes en régime instationnaire qui contrairement aux précédentes, dépendent du temps.

Dans la première catégorie, la conductivité thermique est obtenue directement par le résultat de la mesure. C'est notamment l'exemple de la méthode de la *plaque chaude gardée* détaillée plus loin. Dans la seconde catégorie, qui regroupe les méthodes les plus répandues, les mesures sont effectuées en fonction du temps et permettent de ce fait l'identification de plusieurs paramètres comme la conductivité, la diffusivité, l'effusivité ou d'autres groupements de  $\lambda$  et  $\rho.c_p$  tout aussi éloquentes. Ce qui différencie ces dernières, sont :

- le mode d'excitation appliqué à l'échantillon qui peut être de type photothermique (laser) ou électrothermique (effet joule)
- la nature de la perturbation
- le type de mesure (température, flux ou les deux) et sa localisation.

A travers un panorama complet des différentes méthodes de caractérisation thermique des solides, Degiovanni établit un classement avisé selon ces trois critères [65].

Dans nos travaux, nous distinguerons les méthodes dites « sans contact » des méthodes « avec contact ». La première catégorie fait référence à une expérience où l'excitation et la mesure de la réponse en température sont éloignées de l'échantillon. La plupart d'entre elles est fondée sur la détection optique des effets thermiques. C'est le cas des *méthodes flash* (§ 1.3.2). Les autres induisent un contact intime entre le dispositif d'excitation, les sondes de mesure et l'échantillon. C'est le cas des méthodes de type *fil chaud/plan chaud* (§ 1.3.3). Ces deux approches sont utilisées pour la caractérisation thermique à haute température.

### 1.3.2 Les méthodes sans contact

A température ambiante, la méthode flash (face arrière) est la technique la plus utilisée à ce jour pour la caractérisation thermique. L'abondante littérature relatant les perpétuelles améliorations afférentes au dispositif de mesure, aux modèles de calcul et à l'estimation des paramètres en témoigne ([66, 67, 68, 69]). En prenant soin d'adapter méticuleusement les outils tout en respectant les précautions d'usage des hautes températures, cette méthode transitoire impulsionnelle permet également la caractérisation en température.

**Principe de la méthode flash** Dans son principe, elle consiste à soumettre la face avant d'un échantillon plan à une impulsion de flux de chaleur photothermique de courte durée et à suivre l'évolution temporelle de la température (communément appelé thermogramme) en un ou plusieurs points de l'échantillon (FIG. 1.19).

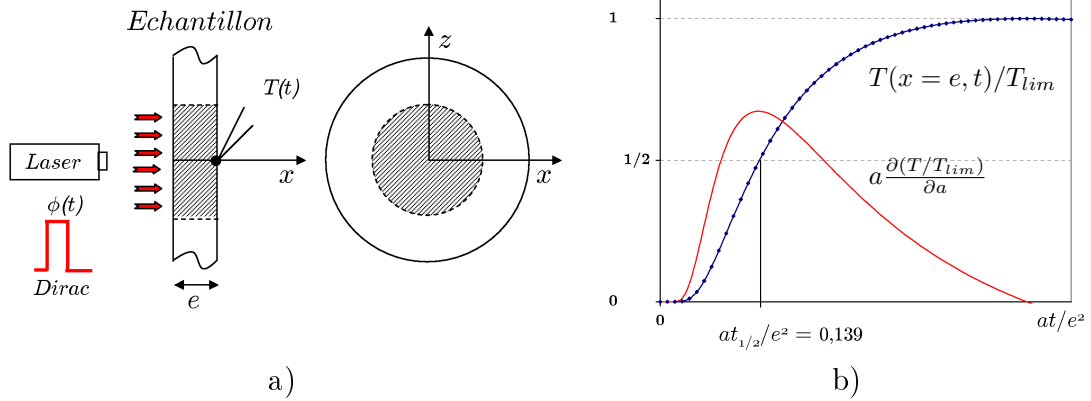


FIG. 1.19 – a) Principe de la méthode flash, b) Thermogramme en face arrière, courbe de sensibilité réduite et temps de demi-montée dans un cas idéal (sans pertes).

En considérant le cas expérimental idéal où la durée de l'impulsion est infiniment petite, le flux d'excitation géométriquement uniforme et les pertes thermiques négligeables, la réponse en température à une profondeur  $x$  de l'échantillon s'obtient par une méthode de séparation de variables et s'écrit :

$$T(x, t) = \frac{Q}{\rho c_p} \left[ 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \cos\left(\frac{n\pi x}{e}\right) \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 at}{e^2}\right) \right] = T_{lim} \cdot f\left(\frac{x}{e}, \frac{at}{e^2}\right) \quad (1.15)$$

où  $e$  est l'épaisseur de l'échantillon et  $Q$  l'énergie d'excitation.

Cette solution est surtout exploitée pour la mesure de la réponse en température en face arrière ( $x = e$ ) présentant l'avantage d'y être continue. Le suivi de ce signal a donné lieu historiquement au modèle simple d'estimation de la diffusivité de Parker [70] consistant à considérer le temps de « demi-montée » du thermogramme selon :

$$\frac{at_{1/2}}{e^2} = 0,139 \quad (1.16)$$

avec  $t_{1/2}$  tel que  $\frac{T(x=e, t_{1/2})}{T_{lim}} = 1/2$ .

Ce cas très hypothétique peut être étendu à d'autres configurations, prenant en compte par exemple les effets parasites à l'origine de biais. Quatre sources d'erreur majeures sont responsables des incertitudes de mesure de la méthode [71] :

- les pertes thermiques radiatives et convectives de l'échantillon
- l'inhomogénéité du flux thermique incident
- la durée et la forme de l'impulsion
- les effets de non linéarité

TAB. 1.5 – Quelques applications de la méthode flash en température.

Temp. (°C)	Echantillon	Support	Source de chaleur	Détecteur	Incertitude	Source
1200	Fer, Cuivre, laiton	Tantale	Laser rubis	InSb - IR	8 %	[72]
700 - 1500	$UO_2$ , $UO_z$ , $4PuO_2$ , $(UPu)C$ , $(UPu)N$	-	Laser rubis	InSb - IR	-	[73]
1400 - 1700	Poco AXM graphite	-	Laser neodymium	Pyromètre	-	[74]
25 - 3000	Poco AXM graphite	Graphite	Nd :phosphate glass laser	HgCdTe - IR, InGaAs - IR	$\leq 6\%$	[75]
2600	$U_rO_2$	-	Nd YAG Laser	Pyromètre et photodiode	$\leq 10\%$	[76]

**Applications en température** A haute température, ces sources d'incertitudes restent à l'évidence bien présentes. La plus préoccupante d'entre elles concerne assurément les pertes thermiques qui doivent impérativement être prises en compte par le modèle d'estimation des paramètres. A la différence du modèle de Parker, c'est la température maximale  $T_{max}$  du thermogramme et non plus  $T_{lim}$  qui est dès lors considérée.

Une façon de limiter ces effets préjudiciables est la réalisation de mesures dans une enceinte sous vide, méthode incontournable quoi qu'il en soit, en raison des phénomènes d'oxydation apparaissant lorsque les températures atteignent des valeurs élevées. Cela implique un équipement optique conséquent (hublots, réflecteurs, lentilles, ...) qui nécessite une certaine maîtrise des réflexions [66](FIG. 1.20). Financièrement, le coût de l'opération augmente alors très rapidement, d'autant plus que les appareillages sont pour la plupart conçus sur mesure (non standard). Le détecteur de température (détecteurs quantiques de rayonnement) est choisi en fonction du temps caractéristique de l'échantillon ( $e^2/a$ ), il doit être ajusté sur la plage de mesure visée. Trois sont généralement nécessaires pour balayer la gamme de températures 25°C - 1000°C.

La méthode flash est appliquée à haute température pour l'étude de milieux aussi variés que les métaux [75, 72], les céramiques [73, 76] ou encore les milieux poreux. Le tableau 1.5 rassemble quelques exemples d'applications pour des températures variées. Figurent également dans ce tableau, des informations pratiques (nature du support de l'échantillon utilisé, source d'excitation, type de détection) ainsi qu'une estimation de l'incertitude de mesure lorsque celle-ci est renseignée par les auteurs.



En définitive, la méthode flash présente l'avantage d'être à la fois rapide, efficace et simple à température ambiante. Sa mise en oeuvre se complique toutefois très vite lorsque des mesures doivent être réalisées à haute température. Un des aspects forts de la technique non abordé dans cette partie qui laisse entrevoir d'importantes perspectives en milieu industriel, est la possibilité de réaliser des contrôles non destructifs (couplage avec la thermographie IR). Aussi, rappelons que la méthode permet uniquement l'accès à la diffusivité thermique. La faible précision sur les valeurs mesurées de capacité thermique et densité peut alors présenter une limitation si l'on prétend à l'obtention de la conductivité thermique.

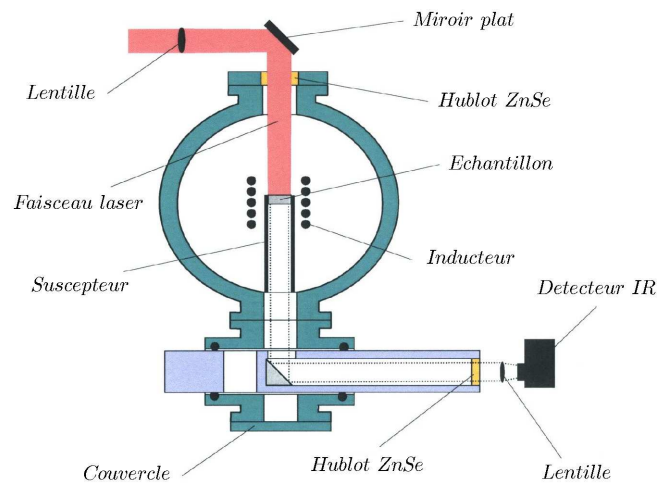


FIG. 1.20 – Représentation schématique d'un diffusivimètre flash adapté pour des mesures à haute température [75].

De nombreuses autres méthodes sans contact existent pour la caractérisation en température. Parmi celles-ci, citons la microscopie photothermique [77] qui reste réservée essentiellement à la mesure de diffusivité thermique de films minces. Récemment, cette technique a été appliquée jusqu'à 1000°C dans le cas de fibres de carbone [78]. D'autres encore sont employées, mais sont pour la plupart inadaptées à une caractérisation à l'échelle des composites (méthode de diffusion Rayleigh forcée, interférométrie « wave-front shearing », etc).

### 1.3.3 Les méthodes avec contact

#### Méthode de la plaque chaude gardée

Parmi ces méthodes, nous pouvons citer la méthode stationnaire de la plaque chaude gardée dont le principe consiste à mesurer la température sur les faces d'un échantillon et le flux qui le traverse sous l'effet d'un gradient thermique (FIG. 1.21).

Le système est symétrique, il comporte deux échantillons de faible épaisseur par rapport aux dimensions transverses et deux plaques froides de part et d'autre. Le flux est obtenu directement par la mesure de la puissance dégagée dans l'enroulement principal de la plaque chauffante. Une garde active est utilisée pour minimiser les pertes.

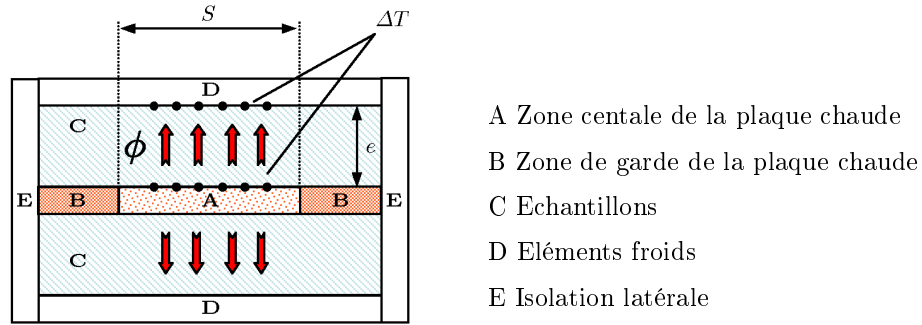


FIG. 1.21 – Méthode de la plaque chaude gardée.

Le modèle et la méthode d'identification sont élémentaires puisque basés sur le transfert unidirectionnel en régime permanent, soit :

$$T_1 - T_2 = R\phi \quad (1.17)$$

où  $T_1 - T_2$  est la différence de température au sein de la plaque à caractériser,  $R$  sa résistance thermique et  $\phi$  le flux de chaleur imposé.

Si l'échantillon est un matériau idéal, on déduit alors sa conductivité thermique de la relation :

$$R = \frac{e}{\lambda S} \quad (1.18)$$

où  $e$  est l'épaisseur de la plaque et  $S$  la surface d'échange.

Certains appareillages fonctionnent dans des gammes de température variées pouvant aller jusqu'à environ  $500^\circ\text{C}$ . Pour ces températures intermédiaires, la cellule en contact avec les échantillons est généralement en cuivre [79], un film de chrome recouvre ces derniers lorsqu'il s'agit de poudre ou de sels [80]. Les mesures de températures sont effectuées par des couples thermoélectriques isolés.

Cette méthode s'adresse principalement à la caractérisation d'isolants thermiques<sup>4</sup>. La limite de conductivités est fixée par la précision de la mesure de la différence de température  $\Delta T$  aux bornes de l'échantillon ; en général,  $\lambda \leq 0,5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ .

<sup>4</sup>Pour les matériaux conducteurs, une autre méthode instationnaire non décrite dans cette synthèse est préférée : la méthode de la barre [81].

Enfin, bien qu'assez précise, la méthode de la plaque chaude gardée présente plusieurs inconvénients ; les temps d'établissement du régime permanent rendent notamment l'expérience très longue, le dispositif de garde en température est en général très imposant. En outre, l'expérience ne faisant pas intervenir les effets capacitifs du matériau, la méthode ne permet pas d'atteindre la capacité thermique. Ces points négatifs ont conduit raisonnablement au développement de méthodes instationnaires par contact .

### Méthode du fil chaud et sondes thermiques

Un certain nombre de dispositifs de mesure par contact utilise une résistance électrique pour créer un déséquilibre thermique au sein du milieu étudié. C'est le cas pour la méthode du fil chaud (FIG. 1.22) dont l'installation et la mise en oeuvre paraissent à priori simples.

**Principe** Un fil métallique fin est pris en sandwich entre deux blocs du matériau à caractériser (une rainure est pratiquée dans l'un des blocs pour obtenir un bon contact thermique) ; à l'instant  $t_0$  pris comme origine, une alimentation reliée au fil lui délivre un échelon de puissance  $Q$  calibrée avec précision. La mesure consiste alors à relever simultanément au cours du temps l'évolution de la température du fil, soit par un couple thermoélectrique soudé sur le fil, soit directement par la mesure de la résistance électrique du fil étalonné au préalable.

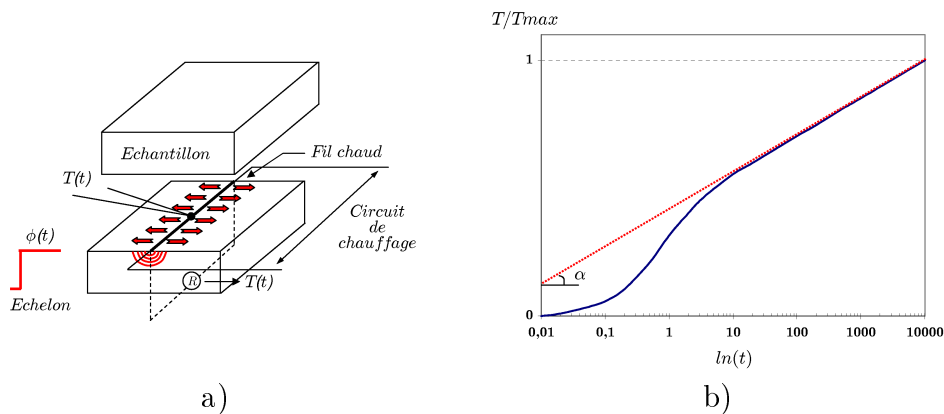


FIG. 1.22 – a) Principe de la méthode du fil chaud, b) Thermogramme associé.

Dans le cadre d'une modélisation simple du problème, la distribution radiale de la température en fonction du temps, autour d'une source linéaire de chaleur dissipant une densité linéique de flux thermique  $q_l = Q/l$ ,  $l$  étant la longueur du fil, s'exprime par la relation :

$$T(r, t) - T_0 = \frac{q_l}{4\pi\lambda} E \left( \ln \left( \frac{r^2}{4at} \right) \right) \quad (1.19)$$

où  $\lambda$  et  $a$  représentent respectivement la conductivité et la diffusivité thermique du milieu considéré infini,  $E(x)$  étant la fonction intégrale exponentielle

$$\int_x^{+\infty} \frac{e^{-u}}{u} du$$

Pour des petites valeurs de  $r^2/(4at)$ , le développement de  $E$  au voisinage de  $r_0$  donne :

$$T(r, t) - T_0 = \frac{q_l}{4\pi\lambda} \left[ \ln \left( \frac{4at}{r_0^2} \right) + \frac{r^2}{4at} + \dots \right] \quad (1.20)$$

Aux temps longs, on obtient :

$$T(r, t) - T_0 \simeq \frac{q_l}{4\pi\lambda} \ln(t) \quad (1.21)$$

L'évolution de la température aux temps longs en fonction du logarithme du temps est donc une droite dont la pente est inversement proportionnelle à la conductivité thermique (FIG. 1.22b). Cette dernière peut alors être estimée par une simple régression. Dans une approche fine du problème, le modèle physique devra tenir compte à la fois, de l'inertie du fil chauffant et du contact entre fil chaud et échantillons, à l'origine du décalage observé sur le début de thermogramme.

Cette méthode conçue initialement pour la caractérisation de liquide puis étendue aux solides isolants à haute température, a donné lieu par la suite à l'utilisation de « sondes thermiques » aux géométries variées : cylindrique, sphérique ou plane. D'une manière générale, il est considéré qu'une sonde est constituée d'une partie centrale fournissant, par effet joule, une densité de flux de chaleur uniforme par unité de volume. Elle est placée dans un milieu de dimensions suffisamment grandes de sorte qu'il puisse être considéré comme semi-infini. Comme pour le fil chaud, il existe deux possibilités pour la mesure de température, soit par un couple thermoélectrique, soit par la mesure de la variation de résistance de l'élément chauffant lui-même.

Dans le cas de la sonde plane par exemple (méthode du *plan chaud*, FIG. 1.23a), le comportement asymptotique aux temps longs est intéressant car il donne la possibilité d'identifier l'effusivité thermique par une mesure de la température directement sur le plan (en  $x = 0$ ) grâce à la relation :

$$T(0, t) - T_0 \simeq \frac{2q_s}{\sqrt{\pi} \sqrt{\lambda \rho c_p}} \sqrt{t} \quad (1.22)$$

où  $q_s$  est cette fois une densité de flux surfacique dégagée par la résistance chauffante.

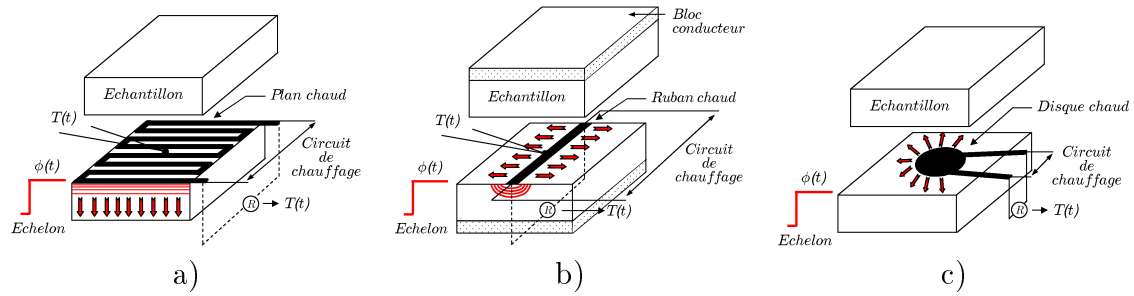


FIG. 1.23 – Mesure par sondes thermique - méthodes du a) plan chaud, b) ruban chaud et du c) disque chaud.

La méthode du *ruban chaud* (ou de la pastille chaude) avec température imposée sur la face non chauffée, illustrée figure 1.23b, est analogue à celle du plan chaud ; elle est dédiée à la caractérisation de matériaux très isolants [82] contrairement à la première qui est applicable sur une large gamme de conductivité. Enfin, des sondes à géométrie discoïdale (méthode du *Hot Disk* [83], FIG. 1.23c) sont également utilisées pour estimer simultanément la diffusivité et la conductivité thermique de matériaux en exploitant la mesure en régime quasi-établi de la tension et de l'intensité dans la résistance<sup>5</sup>.

**Applications en température** A haute température, ces méthodes transitoires sont utilisées essentiellement pour la caractérisation de solides isolants électriques comme les matériaux réfractaires et les oxydes. Les derniers travaux français sur le sujet sont ceux de Zhang [86] qui a développé un dispositif « fil chaud » permettant la mesure de la conductivité thermique de céramiques homogènes isotropes jusqu'à 1400°C.

Lorsqu'il s'agit de matériaux conducteurs de l'électricité comme la grande majorité des composites thermostructuraux dont il est question dans cette étude, la mesure devient plus délicate car les instruments requièrent une isolation électrique. Celle-ci est nécessaire afin d'éviter tout court circuit ou déperdition des signaux qui se produiraient lors de l'expérience. Aussi, il s'agit là d'un véritable frein au développement de ce type de mesure ; le principal obstacle résidant dans le choix puis l'élaboration d'un revêtement, devant :

- maintenir sa fonction d'isolant électrique en température,
- perturber le moins possible l'expérience (résistance de contact la plus faible possible et temps de réponse acceptable),
- garder son intégrité physique sous l'effet de la température.

---

<sup>5</sup>La méthode THS (Transient Hot Strip) utilise le même principe avec une sonde de type ruban [84][85]

TAB. 1.6 – Constitution et caractéristiques des sondes et capteurs de température disponibles dans le commerce.

<b>Mode de chauffage</b>					
Elément chauffant	Isolant		Température limite d'utilisaion	Coût	Réf
<i>Cu</i>	Kapton		150 °C	300 €	[87]
<i>Ni, Pt</i>	Mica		700 °C (usage unique au delà de 400°C)	360 €	[88]
<b>Capteur de température</b>					
Couple thermoélectrique	Isolant	gaine	Température limite d'utilistaion	Coût	Réf
Chromel/alumel	<i>MgO</i>	Inconel	1100°C	40 €	[89]
	<i>MgO</i>	Alliage réfractaire	1200°C	45 €	[89]
<i>Pt/Pt</i> rhodium	<i>MgO</i>	<i>Re</i>	1600°C	550 €	[89]
<i>W/W</i> rhénium	<i>HfO<sub>2</sub></i>	<i>Nb, Ta, Mo</i> et <i>Re</i>	2000 - 2200°C	1000 à 5000 €	[89]

Le tableau 1.6 fait un état rapide des matériaux constitutifs des sondes et capteurs de température solides (*thermocouples*) disponibles dans le commerce. Les températures limites d'utilisation ainsi que les coûts y sont également reportés.

### 1.3.4 Bilan et confrontation des méthodes

Il ressort de cette présentation que les méthodes et dispositifs introduits pour la caractérisation thermique à haute température présentent pour la plupart des aspects intéressants. Seulement, ces derniers ne répondent pas tous parfaitement aux critères fixés par l'étude (cf cahier des charges page 12).

Si les méthodes « sans contact » permettent la mesure de propriétés thermophysiques à de très hautes températures (jusqu'à 3000°C), les incertitudes sur les résultats sont souvent très importantes, notamment sur les valeurs de conductivité thermique déduites des mesures de diffusivité, capacité et densité. Les coûts des installations et de maintenace sont par ailleurs très élevés en raison de l'instrumentation nécessaire (prix d'achat 200 000€, source Netzsch [90]). La réalisation de mesures exige de plus un personnel hautement qualifié (donc onéreux en terme de salaire), et souvent consacré à plein temps dans cette activité.

Contrairement à cette catégorie, les mesures par contact réalisées au moyen de sondes thermiques présentent des atouts substantiels. En effet, il est possible d'analyser des échantillons comportant des tailles réalistes, en particulier vis-à-vis de l'étude des composites (épaisseur de plusieurs centimètres pour une bonne

représentativité), de nature variée (isotrope ou anisotrope) et de conductivité comprise dans la fourchette  $0,01 \leq \lambda \leq 100 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Leur simplicité, leurs faibles coûts ainsi que leur robustesse en font un moyen de mesure bien adapté aux hautes températures. Dans ces conditions, il est opportun de se tourner vers ce type de méthodes dont nous devons lever les difficultés d'ordre matériel pour pouvoir les appliquer aux échantillons conducteurs.

Même si l'inertie des résistances chauffantes et le contact entre échantillon et système de mesure engendrent des développements mathématiques pour améliorer la précision de mesure, ces méthodes de caractérisation par contact à haute température ne posent pas de difficultés théoriques. C'est uniquement un problème de choix de matériaux. **Nous faisons face à un verrou technologique dont le véritable enjeu est de concevoir puis développer des sondes thermiques isolées électriquement capables de fournir une source de chaleur par effet joule et sans hystérésis jusqu'à haute température.**

## 1.4 Conclusion du chapitre et stratégie de l'étude

Ces recherches bibliographiques justifient la stratégie annoncée au début du manuscrit. L'apport de connaissances sur les matériaux composites thermostructuraux proposé dans la première partie, nous a permis d'entrer dans le sujet. Le point principal que nous retiendrons pour la suite concerne ici la nature fortement hétérogène de ces matériaux qui devrait inévitablement se répercuter sur leurs propriétés thermiques. Cette variabilité de leur anatomie justifie ainsi pleinement l'existence d'une étude théorique approfondie sur le comportement thermique des composites ; le choix notamment de la taille d'échantillon représentatif pour l'adoption d'une méthode de mesure de propriétés thermophysiques en dépend. Notons que les modèles développés devront également pouvoir être utilisés en vue de l'optimisation ou/et de la conception des matériaux.

L'objectif suivant va consister à établir une méthode de caractérisation de propriétés thermophysiques macroscopiques. Nous décidons pour cela d'utiliser des sondes thermiques placées au contact d'échantillons de grande taille pour lesquelles une estimation simultanée de la conductivité et de la capacité thermique est souhaitable. Ce type de méthode est envisagé pour des raisons pratiques et économiques aux hautes températures. Une étape de validation réalisée à basse température nous permettra alors d'entrevoir sereinement la suite de l'étude.

Enfin, pour les niveaux de température escomptés (1000 à 1500°C), force est de constater que les sondes thermiques disponibles dans le commerce ne nous permettent pas d'entrevoir la réalisation de mesures. Il convient dans ce cas de développer nos propres instruments en proposant de nouvelles technologies quant à leur conception. L'utilisation d'éléments chauffants en carbone revêtus d'une céramique isolante est ici considérée ; un procédé de dépôt CVD (Chemical Vapor Deposition) est employé.

De la même manière, la mise au point de capteurs de température linéiques, développés afin d'intégrer au mieux le caractère hétérogène des composites, est entrepris.





# Chapitre 2

## Modélisation thermique des composites

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Le triple changement d'échelle . . . . .</b>	<b>59</b>
2.1.1	Démarche et modèles retenus . . . . .	59
2.1.2	La méthode de corrélation flux/force (FFCM) . . . . .	60
<b>2.2</b>	<b>Premier changement d'échelle . . . . .</b>	<b>64</b>
2.2.1	Mise en place de la procédure . . . . .	64
2.2.2	Prise en compte du caractère anisotrope transverse des fibres	64
2.2.3	Applications et validations de la modélisation . . . . .	66
<b>2.3</b>	<b>Second et troisième changement d'échelle . . . . .</b>	<b>82</b>
2.3.1	Originalité du modèle proposé . . . . .	82
2.3.2	Représentation des géométries idéalisées . . . . .	84
2.3.3	Résolution du problème thermique . . . . .	88
2.3.4	Validation et application à l'optimisation thermique . . . . .	89
<b>2.4</b>	<b>Conclusion du chapitre . . . . .</b>	<b>93</b>

---



L'objet de ce chapitre est d'exposer la démarche multiéchelle mise en place pour la détermination de la conductivité thermique effective de matériaux composites thermostrostructuraux. A travers les applications successives de deux modèles distincts adoptés pour leur pertinence vis-à-vis de la description du transfert thermique, l'ensemble des niveaux d'hétérogénéités perceptibles au sein des composites pourra être considéré.

Les codes de calcul développés sont ici validés sur des cas idéaux par comparaison aux modèles de la littérature ; ils sont ensuite mis en pratique sur les milieux réels. Lorsque cela est possible, les résultats obtenus sont confrontés aux mesures expérimentales.

## 2.1 Le triple changement d'échelle

### 2.1.1 Démarche et modèles retenus

Notre revue bibliographique a révélé l'existence de plusieurs techniques permettant l'accès à la conductivité thermique équivalente d'un matériau composite. Toujours selon cette même étude, il semblerait pourtant que le nombre de modèles soit inversement proportionnel à la complexité des structures étudiées ; la prise en compte de la texture anisotrope transverse des fibres par exemple n'est pas toujours catégorique pour la majorité des modèles présentés. Parmi cet éventail, les modèles mathématiques ont été écartés en raison de leur caractère trop spécifique, de même que les modèles fondés sur l'analogie électrique, sources de mauvaises interprétations physiques lorsqu'ils sont appliqués à des motifs périodiques représentatifs.

La démarche de modélisation engagée pour conduire cette étude suggère la réalisation de trois changements d'échelle, les différents moyens d'intégration utilisés sont détaillés dans les paragraphes qui suivent.

**Premier changement d'échelle** Les conductivités thermiques effectives des éléments unidirectionnels « fibres + matrice » sont calculées par le modèle parallèle pour la composante longitudinale. Pour la composante transverse, un calcul numérique par une méthode mettant en corrélation les flux et les gradients thermiques appliqués est réalisé directement sur une observation microscopique du matériau à cette échelle.

L'avantage d'une telle approche est le respect strict de la géométrie du matériau. En effet, si les méthodes de calcul analytiques conduisent à des prévisions satisfaisantes dans le cas de fibres parfaitement cylindriques, celles-ci ne conviennent plus lorsque les fibres ont une morphologie irrégulière (cas de fibres ex-cellulose par exemple) ou lorsqu'un arrangement réel doit être pris en compte. La résolution se fait par éléments finis.

**Second changement d'échelle** Le passage à l'échelle des plis est réalisé par un second modèle numérique qui s'appuie cette fois sur un motif périodique tridimensionnel représentatif de l'architecture composite. Par une méthode tout à fait analogue à la précédente, on déduit le tenseur de conductivité thermique des plis. La description précise des trajets et sections de fils est permise dans ce modèle par la représentation discrétisée du milieu par éléments finis. Cela procure par conséquent au modèle la possibilité de générer tout type d'architectures stratifiées 2D, soit de manière automatique, soit sous forme paramétrée par l'utilisateur. L'insertion de patins de matrice permet en outre de modéliser étroitement le couplage inter-fils et inter-plis qui ne peut être parfait dans la réalité.

**Troisième changement d'échelle** Enfin, la dernière étape de ce travail d'homogénéisation permettra d'aboutir au tenseur de conductivité effectif des composites de manière analytique. Considérant les propriétés thermiques de chacune des strates, il s'agit ici d'exprimer ces dernières dans le repère propre du composite en considérant naturellement leur épaisseur respective.

## 2.1.2 La méthode de corrélation flux/force (FFCM)

### Principe

Le principe de cette méthode [91] est de simuler numériquement une véritable expérience de conductivimétrie sur un échantillon parallélépipédique. Telle la méthode de la « *plaque chaude gardée* » [92], il s'agit de comptabiliser le flux de chaleur moyen traversant le milieu sous l'effet d'un gradient thermique moyen pour aboutir à la conductivité. Pratiquement, on impose uniformément à l'échantillon une température chaude ( $T_c$ ) et une température froide ( $T_f$ ) sur deux faces opposées associées à des conditions de périodicité sur les autres faces (FIG. 2.1).

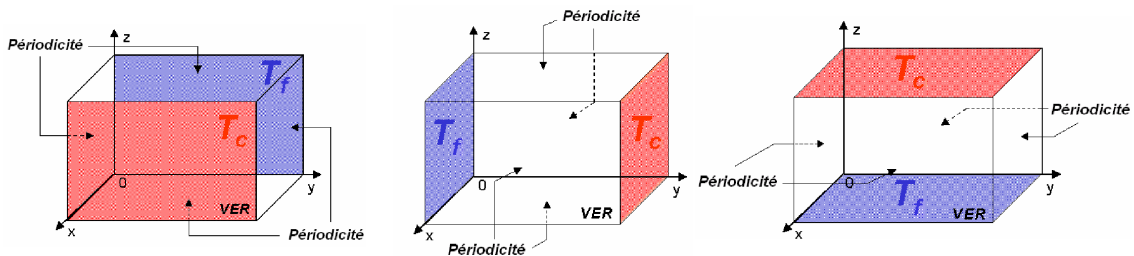


FIG. 2.1 – Simulations numériques avec gradient imposé dans les trois directions de l'espace.

Dès lors, en régime stationnaire, un gradient imposé dans la direction x nous donne sans conteste :

$$\left\langle \frac{\partial T}{\partial y} \right\rangle = \left\langle \frac{\partial T}{\partial z} \right\rangle = 0 \quad (2.1)$$

Ce qui permet de déduire trois composantes du tenseur de conductivité à partir de la loi de FOURIER énoncée dans l'équation 1.2 :

$$\lambda_{xx} = \frac{\langle \phi_x \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial x} \rangle} \quad \lambda_{yx} = \frac{\langle \phi_y \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial x} \rangle} \quad \lambda_{zx} = \frac{\langle \phi_z \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial x} \rangle} \quad (2.2)$$

Cette procédure, répétée deux autres fois en imposant successivement le gradient dans les directions y et z, permet de déterminer les six autres composantes du tenseur de conductivité :

$$\lambda_{xy} = \frac{\langle \phi_x \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial y} \rangle} \quad \lambda_{xz} = \frac{\langle \phi_x \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial z} \rangle} \quad (2.3)$$

$$\lambda_{yy} = \frac{\langle \phi_y \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial y} \rangle} \quad \lambda_{yz} = \frac{\langle \phi_y \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial z} \rangle} \quad (2.4)$$

$$\lambda_{zy} = \frac{\langle \phi_z \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial y} \rangle} \quad \lambda_{zz} = \frac{\langle \phi_z \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial z} \rangle} \quad (2.5)$$

L'application de la méthode à un problème 2D nécessite seulement deux opérations pour décrire le tenseur de conductivité qui contient quatre termes dans ce cas. Pour un matériau isotrope dont la conductivité se réduit à un scalaire  $\lambda$ , une seule et unique expérience suffit.

### Application aux milieux périodiques

Comme il est pratiqué pour l'expérience de la « *plaque chaude gardée* », la FFCM doit être appliquée sur un échantillon représentatif : le domaine de calcul doit être suffisamment important de façon à (i) prendre en compte les hétérogénéités du milieu et à (ii) éliminer l'influence des conditions aux limites appliquées. Un domaine de calcul qui respecte ces règles est appelé « *volume élémentaire représentatif* » (V.E.R.) : c'est le plus petit domaine géométrique dont le comportement thermique est identique à celui du milieu global.

Dans le cas des milieux périodiques, l'homogénéisation doit être réalisée sur le motif périodique élémentaire pour demeurer efficace. Des recommandations pratiques ont été établies par Goyhénèche et al. [91], celles-ci définissent les conditions aux limites à appliquer.

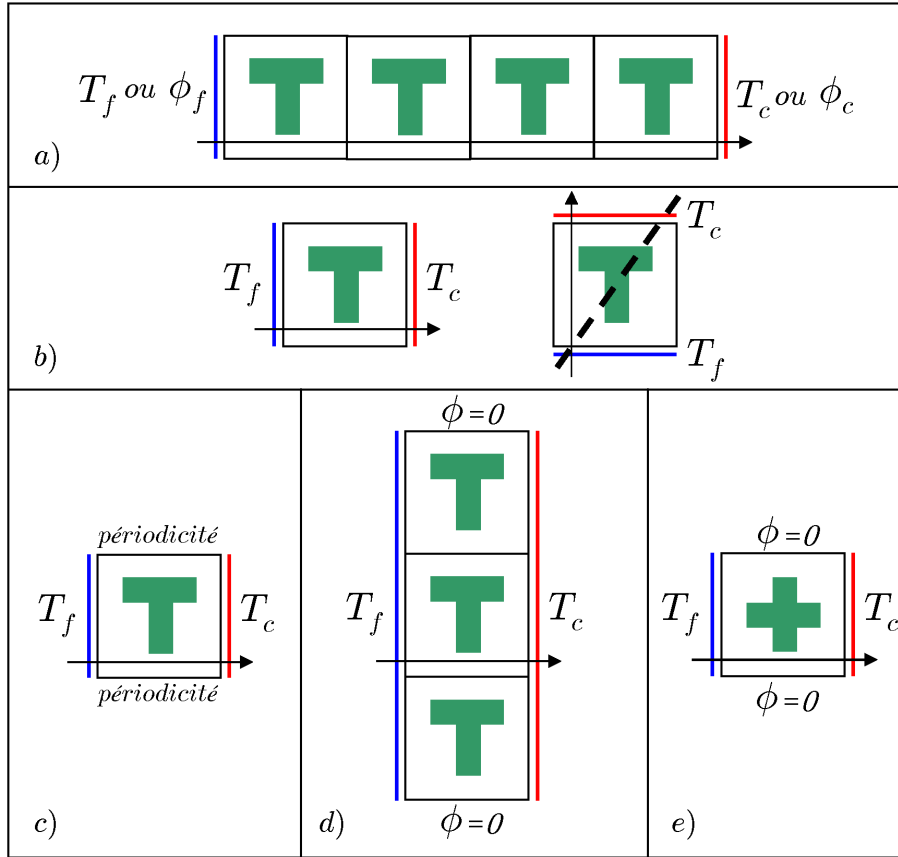


FIG. 2.2 – Illustration 2D des règles pratiques pour l'application de la FFCM.

Dans la direction parallèle au gradient imposé :

- des conditions de température ou de flux imposé peuvent être appliquées en superposant plusieurs motifs périodiques dans cette direction (FIG. 2.2a)
- des conditions de température imposée peuvent être appliquées sans superposition du motif périodique si les frontières représentent des plans de symétrie pour le champ de température (FIG. 2.2b).

Dans les directions perpendiculaires au gradient imposé,

- des conditions de périodicité peuvent être utilisées directement (FIG. 2.2c).
- des conditions d'isolation peuvent être utilisées en juxtaposant plusieurs motifs périodiques dans les directions perpendiculaires au gradient (FIG. 2.2d)
- des conditions d'isolation peuvent être utilisées sans juxtaposition du motif périodique si les frontières constituent des plans de symétrie pour le champ de température (FIG. 2.2e)

Enfin, la superposition ou la juxtaposition du motif périodique peut être considérablement réduite si les prises de moyennes permettant le calcul de conductivité effective sont effectuées sur un motif situé loin des frontières, et non sur l'ensemble des motifs constituant le domaine de calcul.

La figure 2.3 propose d'illustrer les règles en partie énoncées ici en appliquant la FFCM sur un motif élémentaire construit à partir d'un assemblage de parcelles hexagonales. Dans le premier cas présenté (a), le motif est symétrique dans le sens du gradient imposé et simplement périodique dans la direction perpendiculaire. Ce cas est favorable à l'application de la méthode avec des conditions aux limites de type périodiques appliquées sur les faces latérales et de températures imposées sur les faces supérieures et inférieures. Dans le second cas (b), cette même représentation ne respecte plus les hypothèses puisque, bien qu'il reste périodique dans le sens perpendiculaire au gradient, le motif n'est plus symétrique dans le sens parallèle au gradient. Il faut alors envisager la juxtaposition d'un nombre suffisant de motifs pour s'affranchir des conditions aux limites.

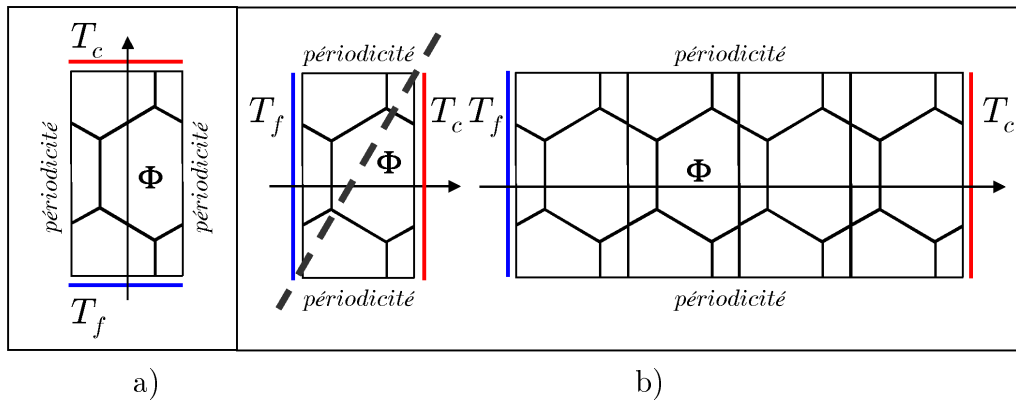


FIG. 2.3 – Exemple d'application : choix du domaine de calcul et conditions aux limites.



## 2.2 Premier changement d'échelle

A l'échelle macroscopique, il a été précédemment énoncé que les phénomènes de transfert de chaleur sont régis par la loi de FOURIER (§ 1.2.1). Ces transferts peuvent également être perçus comme la résultante d'un très grand nombre d'actes élémentaires de transport définis à plus petite échelle et dont la moyenne tend à nouveau vers un comportement obéissant à la même loi. Pour cette raison, le formalisme qui décrit le transport est donc toujours le même quelle que soit l'échelle considérée, sauf bien sûr à l'échelle la plus petite, c'est-à-dire celle à laquelle il n'est plus possible de définir de conductivité thermique. La méthode FFCM peut donc être employée ici.

### 2.2.1 Mise en place de la procédure

L'adaptation du modèle de Staicu [61] au cas présent nous a conduit à établir la procédure décrite ci-dessous. Quatre étapes conditionnent la marche à suivre :

1. Aquisition de l'image : Des coupes micrographiques transversales (découpage selon l'axe perpendiculaire des fibres) de l'échantillon sont réalisées avec un contraste ajusté puis exportées sous un format ne dégradant pas l'intégrité de l'image (PNG, Tiff, ...).
2. Seuillage de l'image : Une séparation des deux phases, fibre et matrice, est réalisée par un traitement d'image. Le résultat est une image binaire noire et blanche.
3. Définition du champ de conductivité : Une conductivité thermique afférente aux deux constituants est affectée à chacun des pixels (blanc et noir) de l'image.
4. Résolution : Le problème thermique est résolu numériquement par éléments finis en appliquant la méthode FFCM sur un volume élémentaire représentatif du matériau (2D). En raison de la linéarité du problème sur un faible écart de température, les conductivités thermiques affectées ne dépendent pas des valeurs de température froide et température chaude imposées. Généralement, nous posons :  $T_C = 1$  et  $T_F = 0$ . Cette hypothèse a été vérifiée par le calcul.

Le cheminement est récapitulé et illustré à la figure 2.4.

### 2.2.2 Prise en compte du caractère anisotrope transverse des fibres

En présence de phases isotropes, une seule valeur de conductivité est affectée par pixel. Le cas anisotrope devient nettement moins évident à traiter puisqu'il faut alors attribuer autant de valeurs de conductivité à chaque pixel que de composantes contenues dans le tenseur.

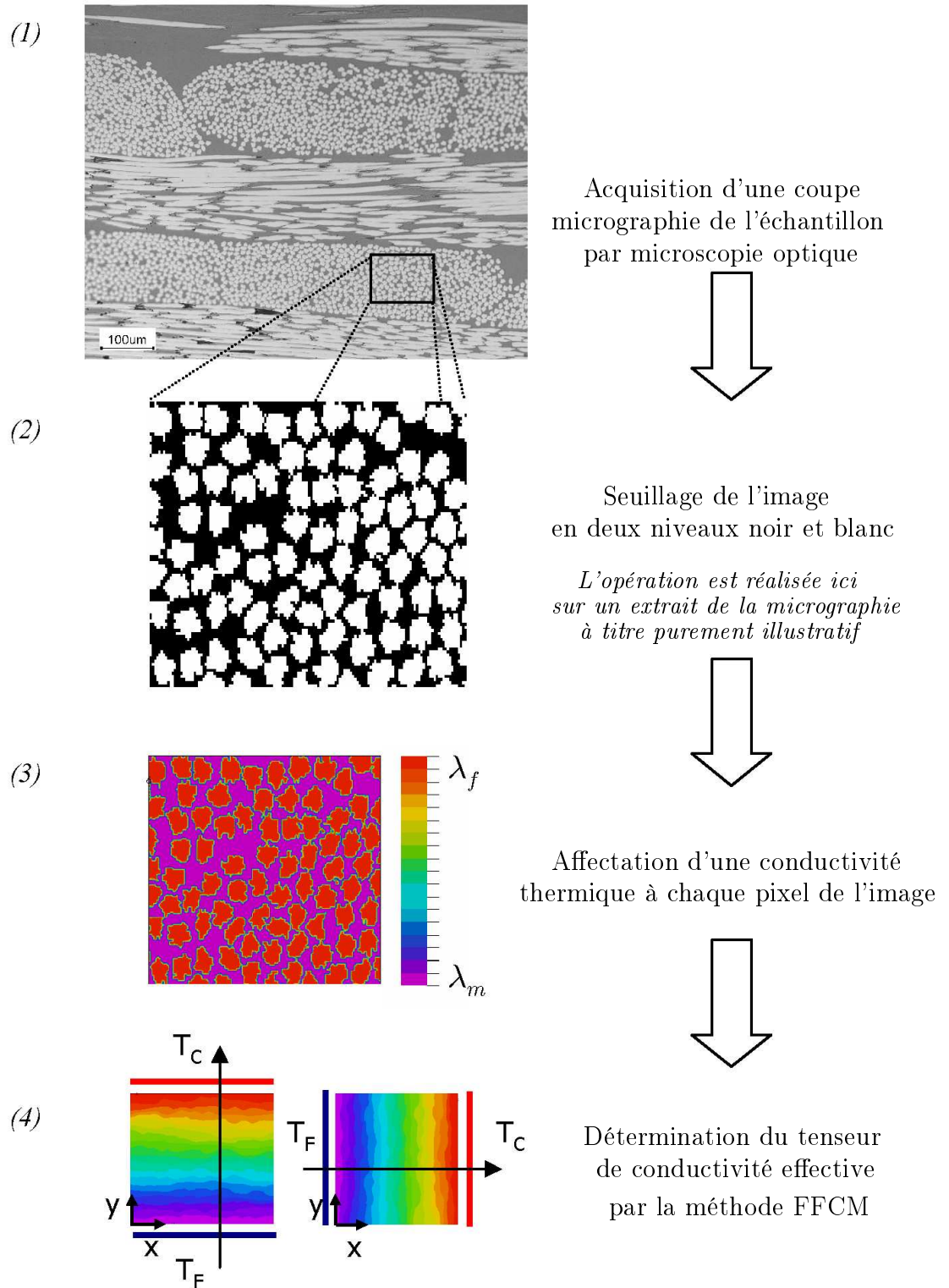


FIG. 2.4 – Schéma de la procédure à suivre pour la détermination de la conductivité thermique transverse équivalente des fils.

En effectuant une recherche numérique des barycentres de chacune des fibres contenues dans l'image, il nous est possible de considérer dans ce modèle le cas de fibres à texture radiale. Pour ces fibres, le tenseur de conductivité thermique (cf § 1.2.2) dans leur repère propre cylindrique est défini comme :

$$\lambda_f = \begin{bmatrix} \lambda_{f,R} & 0 \\ 0 & \lambda_{f,\theta} \end{bmatrix}$$

Par un changement de variable, ce tenseur peut être exprimé dans un nouveau repère cartésien centré sur la fibre tel que :

$$\lambda_f = \frac{1}{x^2 + y^2} \begin{bmatrix} x^2 \lambda_{f,R} + y^2 \lambda_{f,\theta} & xy (\lambda_{f,R} - \lambda_{f,\theta}) \\ xy (\lambda_{f,R} - \lambda_{f,\theta}) & x^2 \lambda_{f,\theta} + y^2 \lambda_{f,R} \end{bmatrix}$$

En posant alors  $u = x - x_c$  et  $v = y - y_c$ , il devient possible d'exprimer le tenseur de conductivité des fibres dans le repère cartésien de l'image en fonction des coordonnées de leurs barycentres  $(x_c, y_c)$  et des conductivités  $\lambda_{f,R}$  et  $\lambda_{f,\theta}$  :

$$\lambda_f = \frac{1}{u^2 + v^2} \begin{bmatrix} u^2 \lambda_{f,R} + v^2 \lambda_{f,\theta} & uv (\lambda_{f,R} - \lambda_{f,\theta}) \\ uv (\lambda_{f,R} - \lambda_{f,\theta}) & u^2 \lambda_{f,\theta} + v^2 \lambda_{f,R} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \lambda_{xx} & \lambda_{xy} \\ \lambda_{yx} & \lambda_{yy} \end{bmatrix} \quad (2.6)$$

Le tenseur de conductivité thermique étant par définition symétrique, trois composantes  $\lambda_{xx}$ ,  $\lambda_{xy}$ ,  $\lambda_{yy}$  suffisent à traduire l'anisotropie de propriété. Ce jeu de conductivités pourra ainsi être affecté à chaque pixel de type « fibre ».

## 2.2.3 Applications et validations de la modélisation

### Cas idéaux

Une première campagne de prédiction de la conductivité transverse effective a été réalisée sur des cas simples pour valider le code de calcul. La configuration choisie est un arrangement régulier carré de disques noirs contenus dans un carreau blanc. Deux motifs élémentaires, à partir desquels il nous est possible de décrire l'ensemble du milieu par la duplication/rotation de ces derniers, ont été extraits puis expérimentés. Ceux-ci sont présentés sur la figure 2.5.

L'évaluation de la conductivité est effectuée pour deux fractions surfaciques  $\alpha = 0,20$  et  $0,55$  et différents rapports de conductivité fibre/matrice,  $\lambda_m$  étant fixé à  $1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . La FFCM est appliquée consécutivement sur les deux motifs élémentaires ainsi que sur une configuration macroscopique construite à partir de 16 éléments de type 1. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 2.1. Celui-ci fait apparaître uniquement les termes prépondérants du tenseur de conductivité, les composantes extra-diagonales étant nulles dans ce cas précis.

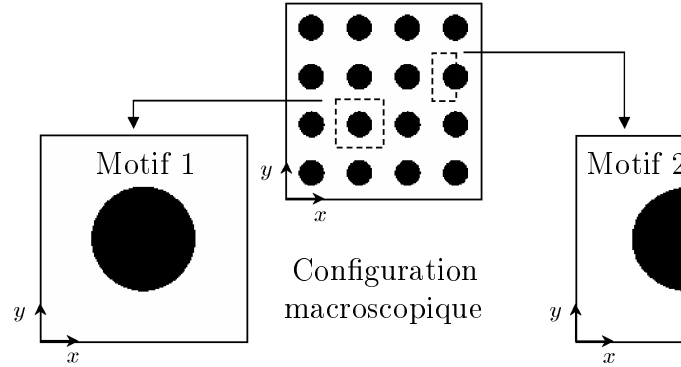


FIG. 2.5 – Configuration et motifs élémentaires étudiés.

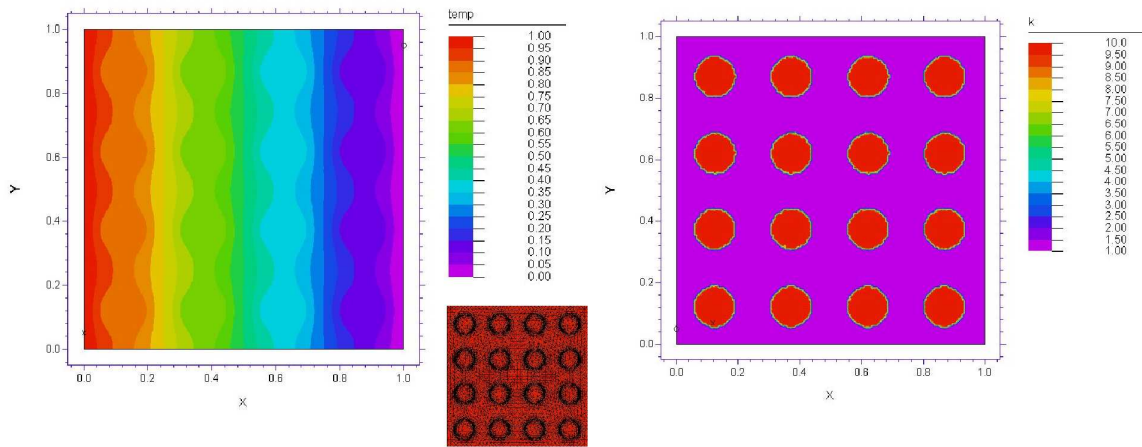
L'examen des premiers résultats indique une dérive marquée de la composante  $\lambda_{xx}$  obtenue à partir du motif 2 par rapport aux autres. La fidélité du maillage par éléments finis entre les trois géométries considérées ici étant assurée afin de garantir l'objectivité de cette comparaison, l'erreur n'est pas d'ordre numérique. Il s'agit là du non respect des conditions d'application de la FFCM. La représentativité du milieu composite par un demi-disque dans un rectangle ne satisfait pas la périodicité du motif requise pour une sollicitation dans la direction x (voir FIG. 2.6).

TAB. 2.1 – Résultats de la simulation sur les trois géométries

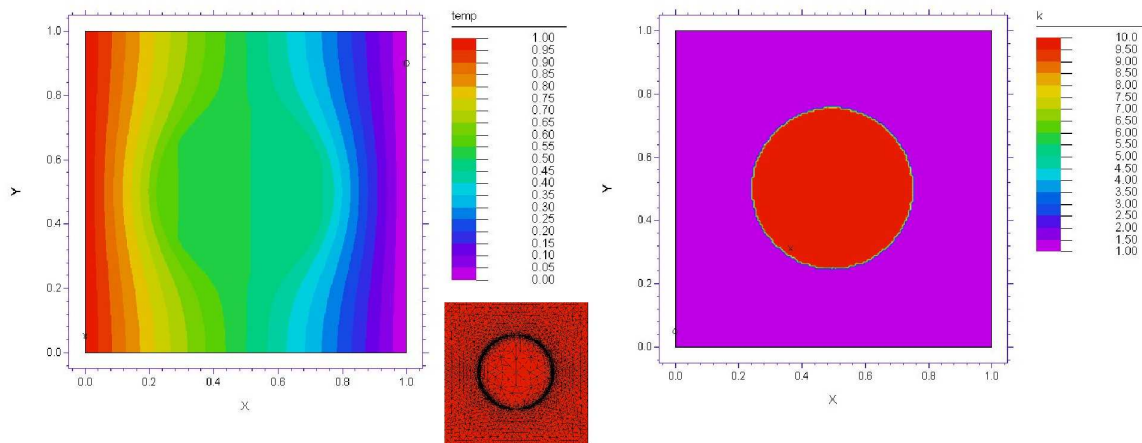
Rapport de conductivité	Fraction surfacique	Config. Macro		Motif 1		Motif 2	
		$\lambda_{xx}$	$\lambda_{yy}$	$\lambda_{xx}$	$\lambda_{yy}$	$\lambda_{xx}$	$\lambda_{yy}$
10	0.20	1.411	1.411	1.409	1.409	<b>1.710</b>	1.411
	0.55	2.739	2.740	2.738	2.738	<b>3.560</b>	2.737
50	0.20	1.508	1.509	1.507	1.507	<b>1.873</b>	1.508
	0.55	3.465	3.467	3.465	3.466	<b>4.919</b>	3.463
100	0.20	1.520	1.521	1.519	1.519	<b>1.898</b>	1.523
	0.55	3.592	3.594	3.592	3.592	<b>5.178</b>	3.589

En revanche, l'égalité des conductivités obtenues à partir du composite macroscopique et du motif 1 confirme que l'expérience numérique pourra bien être réalisée indifféremment sur l'une ou l'autre de ces géométries, dès lors que le motif élémentaire extrait est représentatif du milieu et périodique.

Configuration macroscopique



Motif 1



Motif 2

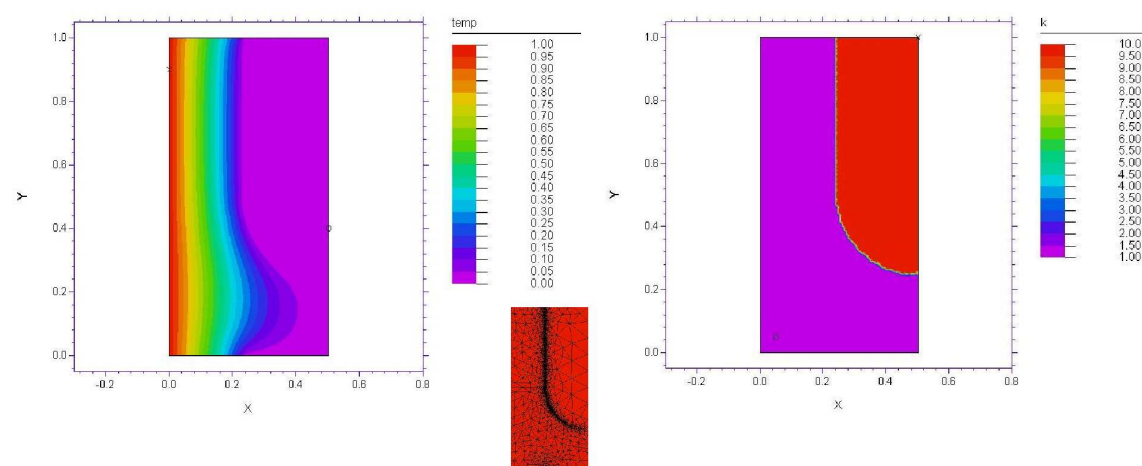


FIG. 2.6 – Visualisation du champ de température et du maillage en régime stationnaire atteint ainsi que du champ de conductivité thermique des 3 géométries pour un rapport de conductivité  $\lambda_f/\lambda_m$  égale à 10. Le gradient de température est imposé suivant la direction x.

Une comparaison de ces résultats avec ceux obtenus à partir de trois modèles analytiques extraits de la littérature est présentée sur le graphique de la figure 2.7. Les modèles exploités sont ceux de Rayleigh, Bruggeman et Nielsen en considérant un arrangement carré de fibres (cf §I.2.3). La conductivité équivalente calculée est parfaitement décrite comme on pouvait s'y attendre par ces trois modèles pour les faibles fractions surfaciques. Par contre, la dispersion des résultats observée pour les fractions élevées contrarie ici quelque peu cette validation, bien que les valeurs simulées pour un taux de fibre de 55 % soient en très bon accord avec le modèle de Nielsen.

Cette situation est intéressante car elle accrédite davantage l'utilité d'un modèle numérique qui s'appuie sur une analyse fine et unique de chaque configuration étudiée contrairement aux solutions analytiques, écrites pour un arrangement spécifique de fibres. Pour peu que l'on dispose donc de moyens d'acquisition d'image performants, les perspectives de modélisation apportées par cette méthode sont très prometteuses pour traiter des cas réels.

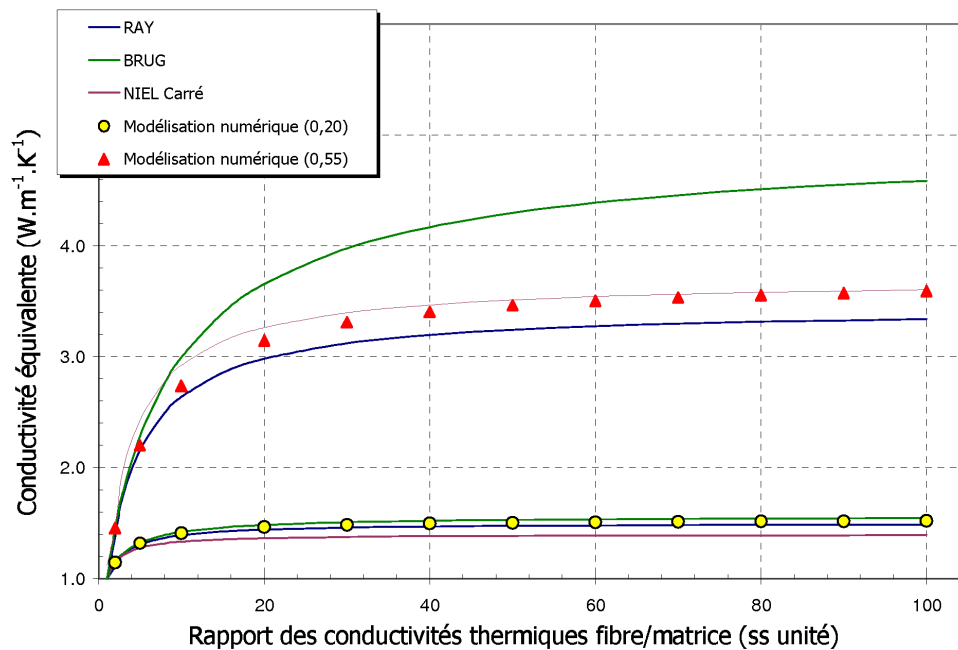


FIG. 2.7 – Confrontation des résultats avec trois modèles analytiques.



### Cas réel d'un composite unidirectionnel (UD)

Appliquons à présent la procédure décrite au paragraphe 2.1.1 à un cas réel. Nous nous proposons ici de déterminer la conductivité transverse d'un composite unidirectionnel carbone/résine. Le tableau 2.2 recense la nature et les propriétés thermiques des constituants. Les fibres possèdent un diamètre moyen de 8 microns et représentent une fraction volumique estimée à 60% lors de l'élaboration.

TAB. 2.2 – Constituants du composite étudié et conductivités associées.

	Nature	Conductivité thermique <sup>a</sup>
Matrice	Résine époxy 8552	$\lambda_m = 0,22 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
Fibre	Carbone Ex-PAN AS4	$\lambda_L = 6,83 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
		$\lambda_T = 1,19 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$

<sup>a</sup>Mesure réalisée par LT-ISITEM pour la matrice, données fournisseur (Hexcel) pour les fibres [93]

Une première série de clichés réalisée en microscopie optique à différents grossissements permet d'apprécier la morphologie cylindrique des fibres (FIG. 2.8). Leur distribution ne semble pas être totalement aléatoire comme cela est habituellement supposé pour un composite UD. L'empilement de mèches lors de l'élaboration du matériau, les unes au dessus des autres, aboutit ici selon toute vraisemblance, à une densité de fibre plus importante dans le plan (xOy) de l'échantillon que dans le plan transversale (xOz). Pour ce composite, la densification est totale, aucune porosité n'est présente à l'échelle macro comme à l'échelle microscopique.

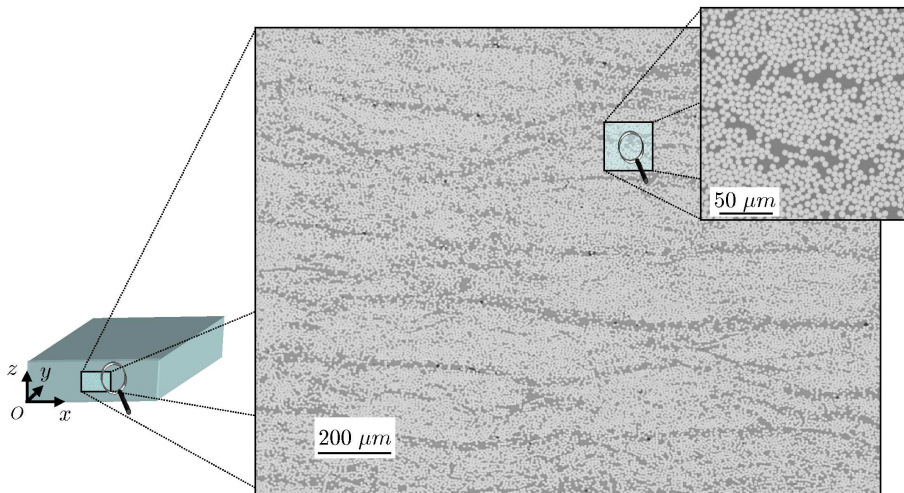


FIG. 2.8 – Coupe micrographique transverse du composite UD.



**Préliminaire** La segmentation des clichés obtenus en microscopie optique après une préparation métallographique de l'échantillon est réalisée par un traitement d'image numérique. Cette opération conduit à une séparation délibérée des deux phases, fibres et matrice. Les micrographies acquises en niveaux de gris sont converties en une image binaire noire et blanche.

- Détermination du V.E.R. : La recherche des dimensions du « *volume élémentaire représentatif* » est effectuée en réalisant une série de calculs de conductivité, exécutés consécutivement sur des domaines de surfaces croissantes d'images, comme l'illustre la figure 2.9a. L'évolution des résultats en fonction des différentes dimensions explorées doit normalement révéler une convergence des conductivités dès que la zone devient suffisamment grande pour être représentative du matériau dans son ensemble. Nous admettrons à ce stade que le V.E.R. est atteint. La répétition de l'opération dans plusieurs régions de l'échantillon est généralement appréciée afin de vérifier le résultat.

En toute rigueur, la détermination du V.E.R exige une telle démarche. Cependant, en pratique, la fraction surfacique de fibres évolue souvent dans une même mesure que les conductivités. Si l'on suppose que le V.E.R. relatif aux fractions surfaciques est équivalent à celui des conductivités, il devient plus aisé de fonctionner avec les fractions surfaciques, l'estimation dans ce cas étant quasi-immédiate (temps de calcul de quelques secondes seulement).

- Calcul de la conductivité effective : La conductivité thermique est estimée sur plusieurs domaines de calcul afin de minimiser tout risque d'erreur. Ceux-ci sont choisis aléatoirement et possèdent des dimensions au moins égales à celles du V.E.R. (FIG. 2.9b). Le résultat final est une conductivité thermique effective moyennée sur l'ensemble des valeurs obtenues associée à un écart type.

**Prise en compte de l'incertitude** D'une façon tout à fait similaire aux cas idéaux traités précédemment, nous définissons les conductivités thermiques en chaque noeud d'un réseau parallélépipédique construit sur les pixels de l'image. Le champ de conductivité ainsi formé est fourni au code d'éléments finis pour y déterminer le champ de température ; le maillage est réalisé indépendamment de cette grille. L'erreur alors générée sur le résultat par cette démarche est nécessairement fonction de (i) la précision sur le champ de conductivité, autrement dit ici de la définition de l'image et de (ii) la précision sur le champ de température calculé que l'on doit à la finesse numérique du maillage.

- Influence de la résolution optique sur le calcul : Le microscope optique du laboratoire permet l'acquisition d'images à différentes résolutions optiques pour un grandissement fixé (cf tableau 2.3). Ne possédant ici aucune information

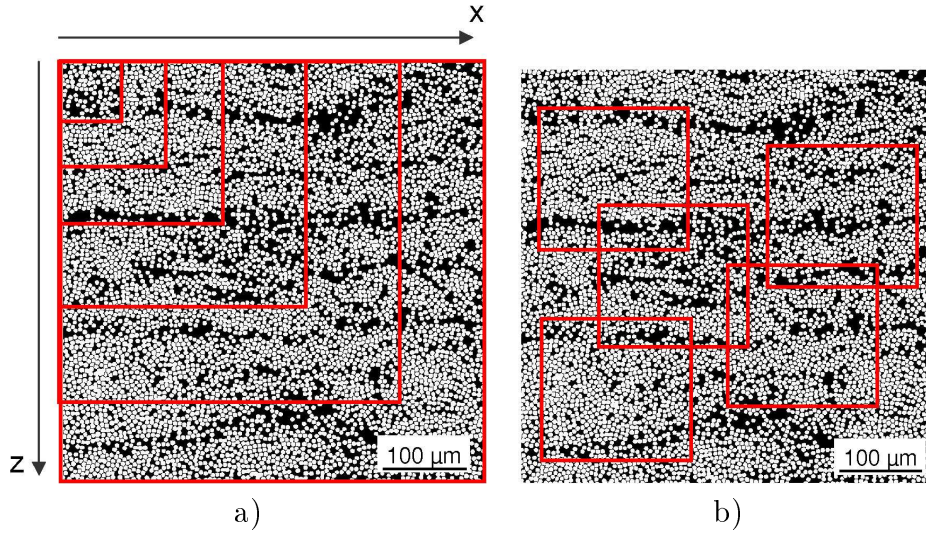


FIG. 2.9 – a) Procédure de recherche des dimensions du V.E.R., b) procédure pour le calcul de la conductivité thermique effective.

sur l'influence de cette donnée expérimentale sur le calcul, évaluons dans quelle mesure la résolution de l'image est importante.

TAB. 2.3 – Correspondance grandissement / résolution optique accessible.

Grandissement	G5 ( $\times 5$ )		G10 ( $\times 10$ )		G20 ( $\times 20$ )	
	Quick	Fine	Quick	Fine	Quick	Fine
Résolution optique ( $\mu\text{m}/\text{pixel}$ )	1,34	0,45	0,67	0,22	0,34	0,11

Un extrait de l'échantillon est expérimenté dans cet objectif pour trois tailles de domaine de calcul ( $100 \times 100$ ,  $300 \times 300$  et  $500 \times 500 \mu\text{m}^2$ ) aux différents niveaux de définition d'image accessibles. La figure 2.10 donne les variations de la conductivité calculée selon l'axe x en fonction de la résolution optique pour les trois grandissements possibles.

En premier lieu, remarquons sur le graphique présenté la discordance des conductivités au sein d'une même taille de domaine. Cela prouve que la définition de l'image exerce véritablement une influence sur le résultat, l'incertitude numérique sur le champ de température étant ici identique.

Toujours sur un même domaine, si l'on s'intéresse de plus près aux valeurs obtenues, un écart est notamment observé entre deux images acquises au même grandissement. L'erreur alors engendrée sur les valeurs pour les deux

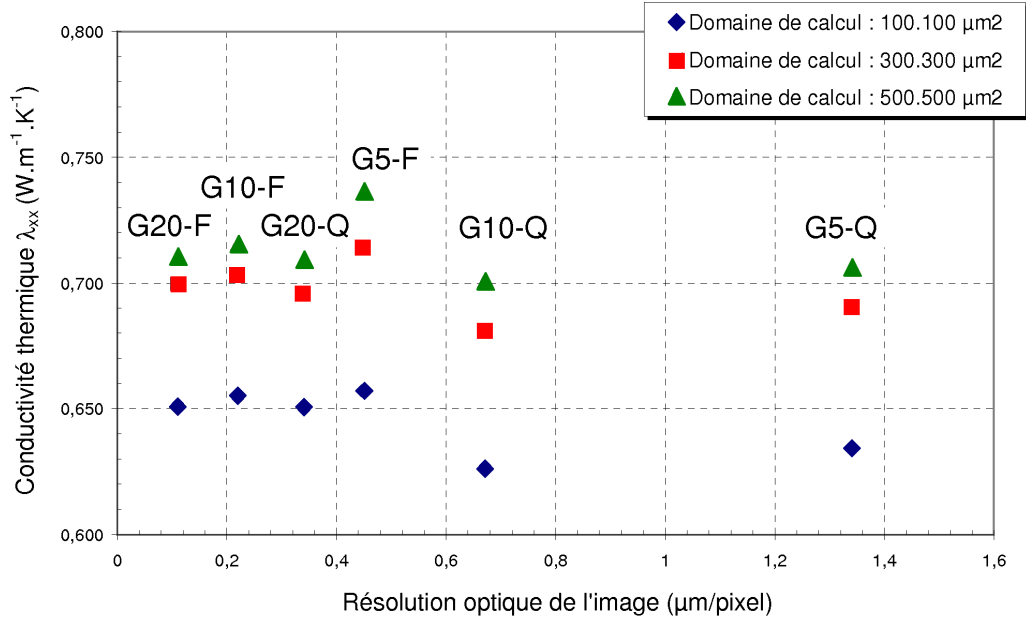


FIG. 2.10 – Influence de la résolution optique sur le calcul de la conductivité  $\lambda_{xx}$  pour trois tailles de domaine de calcul.

résolutions étudiées est de l'ordre de 2 à 4,5%, excepté pour le grandissement maximal G20. Pour ce dernier, la résolution optique ne semble pas influencer les prévisions, l'erreur reste inférieure à 0,5 % dans ce cas. Ces résultats sont présentés au tableau 2.4.

La présentation des micrographies traitées préalablement au calcul des conductivités pour chaque résolution optique, confirme ce résultat (voir FIG. 2.11). Aucune influence de la résolution sur le seuillage des photos n'est visible pour les clichés acquis à un grandissement G20. En revanche, pour les grandissements G5 et G10, la qualité des images binaires comparées s'améliore sensiblement lorsque la résolution augmente.

Indépendamment de ces remarques, l'évolution croissante de la conductivité avec la taille des domaines de calcul pour une même définition d'image (FIG. 2.10), nous laisse penser pour la suite que les dimensions du V.E.R. demeurent vraisemblablement plus proches des  $500 \times 500 \mu m^2$  que des  $100 \times 100 \mu m^2$ .

TAB. 2.4 – Comparaison de la conductivité  $\lambda_{xx}$  calculée pour différentes résolutions optiques sur des domaines de calcul de taille variée.

Grandissement	G20			G10			G5		
Résolution ( $\mu\text{m}/\text{pixel}$ )	0,11	0,34	Ecart (%)	0,22	0,67	Ecart (%)	0,45	1,34	Ecart (%)
Conductivité $100 \times 100 \mu\text{m}^2$	0,651	0,650	0,05	0,655	0,626	4,40	0,657	0,634	3,49
$W.m^{-1}.K^{-1}$ $300 \times 300 \mu\text{m}^2$	0,700	0,696	0,57	0,703	0,681	3,20	0,704	0,690	3,29
$500 \times 500 \mu\text{m}^2$	0,710	0,709	0,17	0,721	0,705	2,23	0,736	0,706	4,10

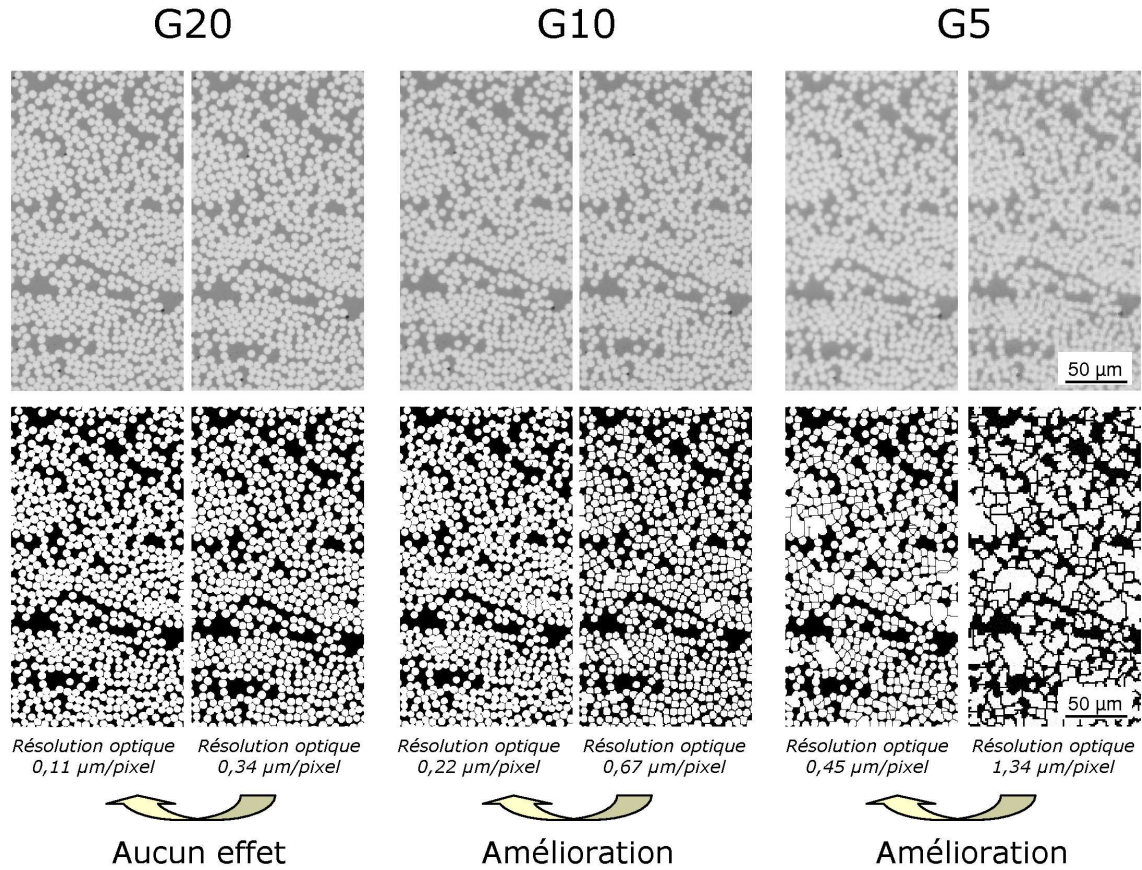


FIG. 2.11 – Visualisation de l'effet de la résolution optique sur le seuillage des micrographies pour les trois grandissements considérés dans l'étude.

- Optimisation du maillage / incertitude numérique : Comme toutes les méthodes numériques, le calcul par éléments finis fournit des solutions approchées dont la cause principale d'incertitude repose sur la qualité du maillage réalisé. La discrétisation des problèmes traités nous conduit à affiner le maillage de sorte que la taille de ses éléments puisse capturer la moindre variation de flux. Pratiquement, cet exercice revient pour notre application à vérifier la convergence des conductivités calculées sur le domaine de calcul lorsque les proportions des éléments diminuent.

Le graphique de la figure 2.12a rapporte la variation de la conductivité en fonction de la tolérance numérique traduisant la finesse du maillage appliqué pour le code utilisé (Flex PdE). Les opérations ont été conduites dans cette première approche sur un domaine de calcul de  $100 \times 100 \mu m^2$ . La résolution optique de la micrographie est de  $0,22 \mu m/\text{pixel}$ .

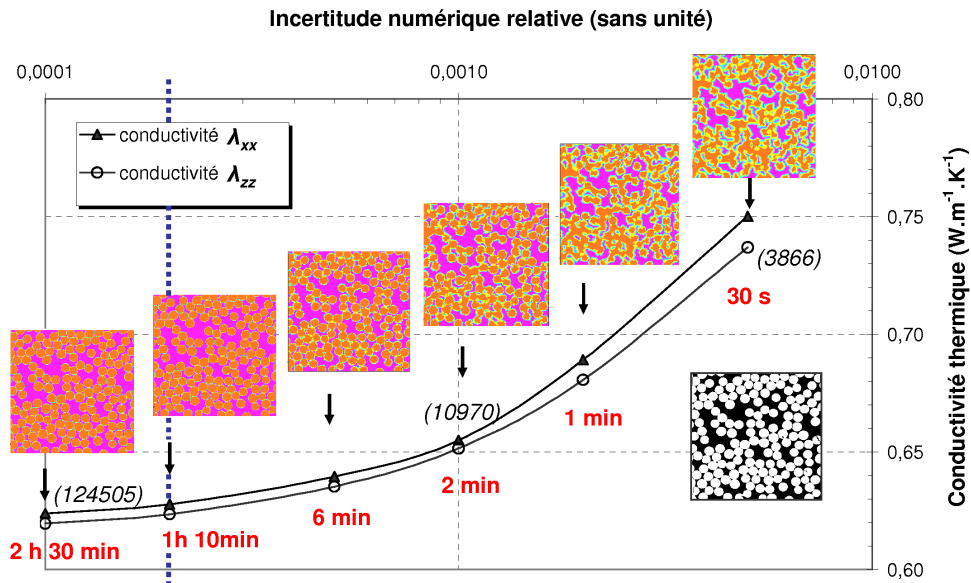
Raffiner le maillage offre en soit une amélioration de la qualité de la solution mais cette opération peut très vite devenir onéreuse en temps de calcul. Nous devons évaluer un point de compromis entre les deux aspects. Dans l'exemple présenté, la conductivité ne cesse de décroître avec la finesse du maillage. Nous admettrons pour ce cas de figure qu'une incertitude numérique de  $0,02 \%$  ( $2 \cdot 10^{-4}$ ) est acceptable. Celle-ci entraîne un écart de  $0,62 \%$  sur la conductivité calculée avec une incertitude de  $1 \cdot 10^{-4}$  nécessitant plus du double de temps de calcul (environ deux heures et trente minutes contre un peu plus d'une heure<sup>1</sup>). De toute évidence, le faible gain de qualité apporté par un allongement conséquent du temps de calcul rend cette opération peu avantageuse.

D'autre part, il est intéressant de mentionner que la représentation du champ de conductivité thermique obtenu post-calcul, procure une ressource supplémentaire pour vérifier la validité du choix de l'incertitude numérique. Lorsque le maillage devient très fin (ce qui revient à diminuer l'incertitude), la cartographie obtenue se superpose à l'identique sur l'image binaire de départ (voir FIG. 2.12a) : fibres et matrice possèdent bien les conductivités affectées.

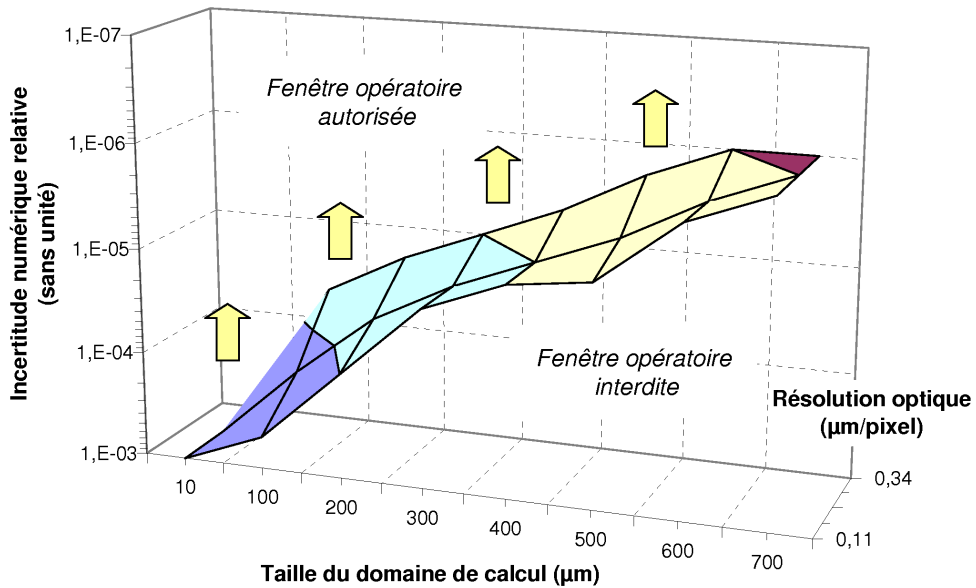
Pour terminer ce paragraphe, les résultats proposés démontrent que l'application du modèle nécessite l'étude au préalable de la résolution optique des micrographies, ainsi que l'optimisation du maillage par éléments finis, tant leur influence sur les résultats peut se révéler cruciale. Ce travail doit être conduit pour chaque taille de domaine exploré. Ainsi, le diagramme « résolution optique / tolérance numérique /

---

<sup>1</sup>Les chiffres sont donnés pour la configuration informatique suivante : processeur Xeon 3,2 GHz, 2 Go de RAM

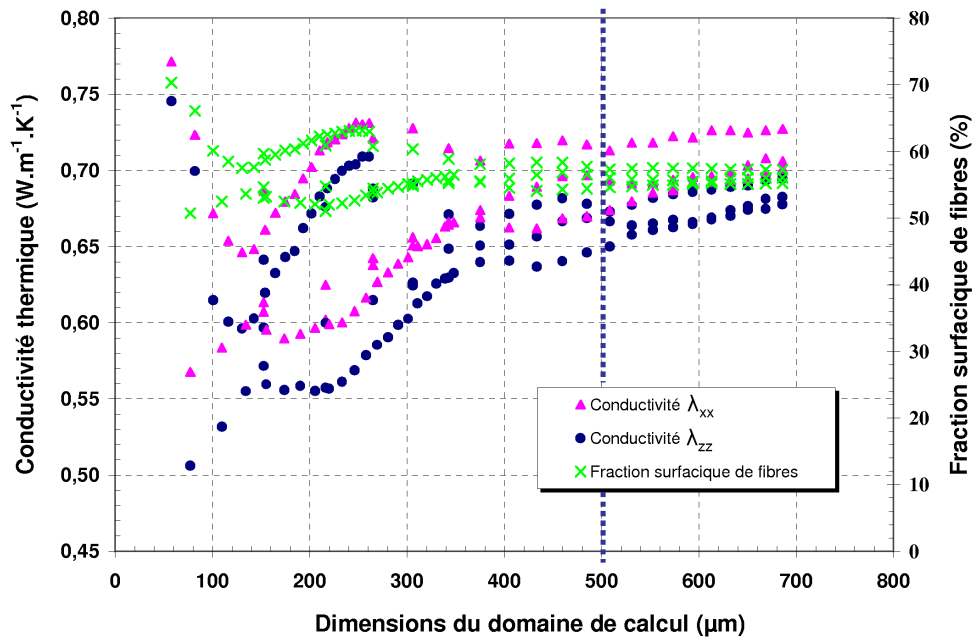


a) Conductivité thermique en fonction de l'incertitude numérique du calcul. Le temps de calcul et le nombre d'éléments sont indiqués sur le graphe.

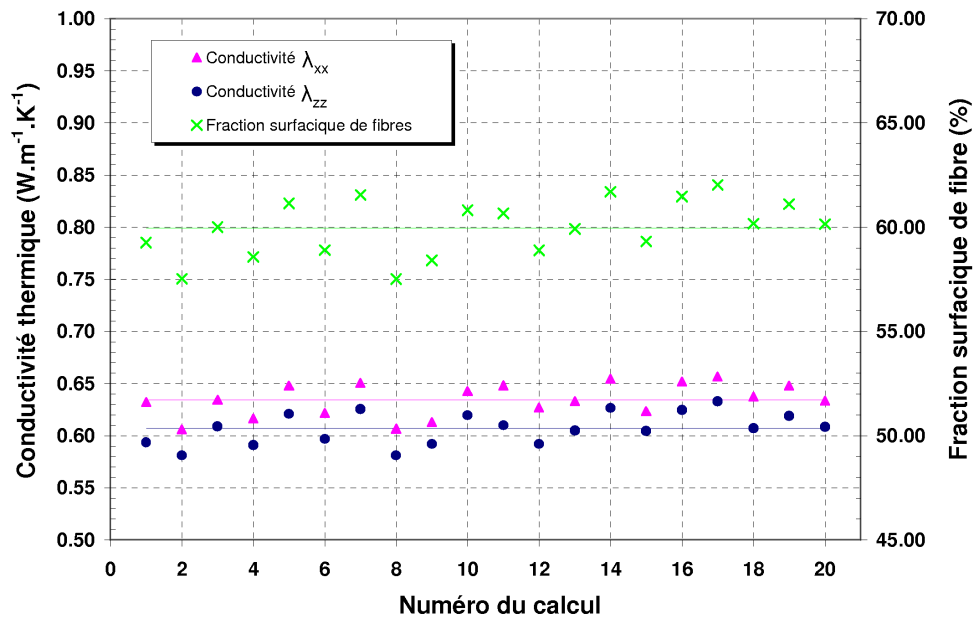


b) Corrélation « incertitude numérique/taille de domaine/résolution optique ».

FIG. 2.12 – a) Etude de la convergence des conductivités thermiques pour un domaine de calcul de  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  - Représentation du champ de conductivité associé à l'incertitude numérique, b) diagramme de corrélation entre résolution optique et incertitude numérique pour une taille donnée de domaine de calcul.



a) Recherche des dimensions du V.E.R.



b) Traitement statistique des résultats.

FIG. 2.13 – Détermination de la conductivité thermique effective transverse du composite UD.

taille de domaine » dressé figure 2.12b, qui établit le lien entre ces trois paramètres expérimentaux, permet d'identifier la surface optimale des conditions à satisfaire pour un calcul correct. Au-dessous de la « nappe », les résultats sont faussés. Au-delà, peu d'influence sur le résultat n'est remarquée alors que le temps de calcul est allongé. Une résolution optique minimale de  $0,34 \mu m$  est requise quelle que soit la taille du domaine de calcul. Bien entendu, ce diagramme est exclusivement dédié au composite unidirectionnel étudié ; il serait alors intéressant de généraliser ce résultat afin d'obtenir un critère valable quel que soit le milieu étudié.

**Résultats et discussions** La recherche des dimensions du V.E.R. s'effectue selon la marche énoncée. Le graphique présenté à la figure 2.13a affiche la variation des conductivités thermiques effectives calculées et celle des fractions surfaciques de fibres pour des tailles de domaines s'échelonnant de 100 à 700  $\mu m$  de côté. Plusieurs régions du composite sont explorées pour une même taille de domaine, l'ensemble des calculs étant réalisé en accord avec le diagramme de corrélation « résolution optique / tolérance numérique / taille de domaine ».

Pour chacune des micrographies étudiées, les composantes  $\lambda_{xx}$  et  $\lambda_{zz}$  obtenues ne se confondent pas, attestant bien là d'une légère anisotropie du milieu. En outre, les valeurs affichées varient davantage lorsque les dimensions des zones considérées sont petites ( $\Delta\lambda \simeq 28 \%$ ). Au contraire, lorsque ces dernières deviennent plus importantes, conductivités et fractions surfaciques tendent à se stabiliser. Nous considérons, au vu de cette figure, qu'un extrait carré de 500  $\mu m$  de côté est représentatif du matériau. Cela représente une fraction surfacique de fibres de 60 % (en accord avec les données fournisseurs), soit environ 2800 fibres.

Un tirage aléatoire d'une vingtaine de clichés respectant les dimensions du V.E.R. est ensuite expérimenté. La résolution optique des images est de  $0,11 \mu m/\text{pixel}$ , les calculs sont réalisés avec une incertitude numérique de  $0,001 \%$  ( $1.10^{-5}$ ). La moyenne des conductivités calculées (FIG. 2.13b) et l'écart type associé à la dispersion des résultats sont reportés dans le tableau 2.5. La fraction volumique de fibres correspondante est également présentée.

TAB. 2.5 – Résultat de la modélisation.

	$\lambda_{xx}$ (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	$\lambda_{zz}$ (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	$\alpha_f$ (%)
Moyenne	0,634	0.607	59.95
Ecart type relatif (%)	± 0,016	± 0,015	± 2,30



Ce composite unidirectionnel a fait l'objet de caractérisations croisées antérieures [93] pour lesquelles douze laboratoires se sont associés. Les résultats de notre prévision sont ici comparés aux mesures expérimentales réalisées par deux d'entre eux pour valider le modèle. Il s'agit des laboratoires LEMTA (B.Rémy, A.Degiovanni) et CEA Le Ripault (D.Rochais) dont les mesures se situent dans la bonne moyenne des résultats recueillis (TAB. 2.6).

TAB. 2.6 – Résultat de la modélisation.

	Modèle num.	Mes. LEMTA	Ecart (%)	Mes. CEA	Ecart (%)
Diffusivité $a_{xx}$ $m^2.s^{-1}$	-	$4,50.10^{-7}$	-	$4,89.10^{-7}$	-
Diffusivité $a_{zz}$ $m^2.s^{-1}$	-	$4,50.10^{-7}$	-	$4,55.10^{-7}$	-
<b>Conductivité</b> $\lambda_{xx}$ $W.m^{-1}.K^{-1}$	<b>0,634</b>	$0,621^a$	2,05	$0,675^a$	6,07
<b>Conductivité</b> $\lambda_{zz}$ $W.m^{-1}.K^{-1}$	<b>0,607</b>	$0,621^a$	2,05	$0,628^a$	3,34

<sup>a</sup>Valeurs calculées à partir des valeurs expérimentales du CETHIL :  $\rho_{UD} = 1530kg.m^{-3}$  et  $Cp_{UD} = 902.5.kg^{-1}.K^{-1}$

Les conductivités calculées sont en accord avec les conductivités mesurées. La composante  $\lambda_{xx}$  est comprise entre les deux valeurs comparées,  $\lambda_{zz}$  est légèrement inférieure. L'écart moyen entre modèle et expérience est de l'ordre de 2 % avec les mesures LEMTA et d'environ 3 à 6 % avec celles du CEA. Cette corrélation confirme la validité du modèle proposé pour le calcul des conductivités effectives sur un cas réel.

*Pour cette application, le modèle développé initialement pour réaliser le premier changement d'échelle (passage des fibres aux fils), est employé pour traiter le cas d'un composite unidirectionnel. L'étude est intéressante à plus d'un titre puisque ce dernier peut être considéré comme un « pli » constitutif de composites stratifiés. Premier et second changements d'échelle sont donc réalisés dans un même calcul. Il s'agit là toutefois d'un cas limite en raison de l'étendue des domaines de calcul, des tailles supérieures deviendraient très rapidement trop gourmandes en ressources informatiques.*

*Notons que l'opération consistant à rechercher la dimension du V.E.R., fondée sur une approche statistique, est très satisfaisante au vu des résultats. Cette opération est rapide et extrêmement simple de mise en oeuvre. Néanmoins, le suivi des fractions surfaciques pour effectuer cette recherche n'aboutit pas dans le cas présent*

*comme nous pouvions l'annoncer. Sur la courbe obtenue (FIG. 2.13a), les fractions surfaciques convergent légèrement plus tôt que les conductivités (350 contre 500  $\mu\text{m}$ ).*

## 2.3 Second et troisième changement d'échelle

### 2.3.1 Originalité du modèle proposé

Le modèle de prévision des propriétés thermiques proposé pour réaliser le passage à l'échelle des plis repose sur une méthode d'homogénéisation tridimensionnelle par éléments finis. Afin d'alléger les efforts de maillage, tout en s'efforçant de reproduire au plus juste les nombreuses architectures composites 2D, la stratégie adoptée entrevoit la résolution du problème thermique, sur un motif périodique représentatif des milieux étudiés construit à partir de cellules élémentaires.

**Confrontation avec les travaux antérieurs** Jusqu'à présent, les modèles numériques développés au laboratoire pour réaliser une telle prévision faisaient appel à une hypothèse embarrassante concernant la démarche d'homogénéisation [59, 94]. Le calcul de la conductivité thermique effective des plis était réalisé en deux étapes. A partir des propriétés des fils et de la matrice, une première homogénéisation menée sur chaque cellule élémentaire  $c_i$  permettait de déduire un tenseur de conductivité thermique local  $[\Lambda]_i$ . En attribuant alors des conditions de flux nul aux frontières, ces cellules assemblées les unes aux autres pour former le motif périodique conduisaient lors d'une seconde homogénéisation au tenseur de conductivité thermique  $[\Lambda]_P$  du pli considéré.

Par principe, la première étape n'est pas correcte car l'homogénéisation est réalisée sur des domaines non périodiques (cf § 2.1.2). C'est pourquoi, le modèle développé dans nos travaux s'efforce de lever cette hypothèse en proposant une unique homogénéisation réalisée directement sur le motif périodique complet du pli. Pour imager ces propos, la confrontation des deux démarches est illustrée par la figure 2.14.

A cet aménagement de la démarche de modélisation, se sont également ajoutées des fonctionnalités améliorant l'étendue et la qualité des prédictions par rapport aux modèles disponibles dans la littérature (cf revue bibliographique) :

- en effet, lorsqu'ils s'appuient sur une description précise des matériaux (trajet et section de fils), les modèles suggérés dans la littérature sont le plus souvent applicables à des géométries particulières telles que le taffetas [58, 95, 96, 56] ou les satins [59, 57]. Seuls ceux ayant recours à une représentation discrète du milieu donnent accès à des géométries variées. Le modèle développé ici est non limitatif, il peut générer tout type d'architecture textile (taffetas, satin, sergé, etc.) soit de manière automatique, soit sous forme paramétrée par l'utilisateur.
- peu de modèles [52] offrent la possibilité de prendre en compte différentes sections de fils et de pouvoir étudier par exemple l'influence de ce paramètre sur la conductivité effective du milieu. Le modèle proposé peut utiliser des sections rectangulaires, paraboliques ou lenticulaires.

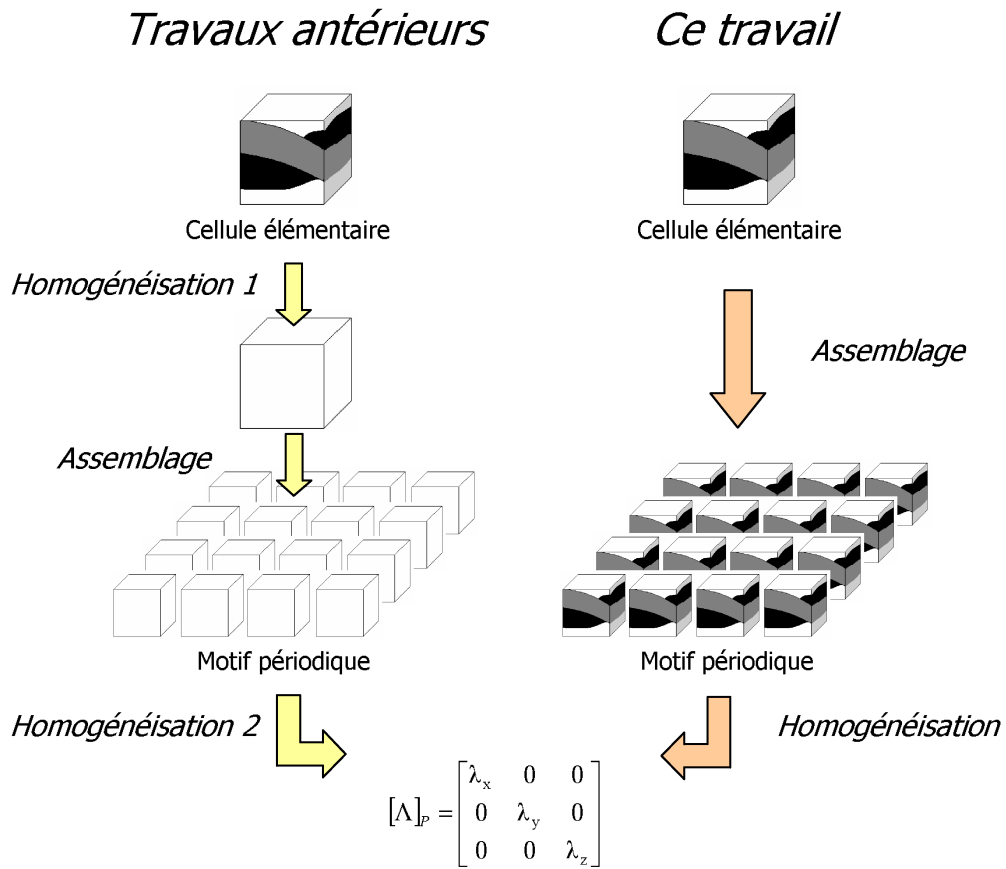


FIG. 2.14 – Confrontation de la démarche de modélisation engagée dans cette étude à celle des travaux antérieurs.

- dans les zones de croisement des fils, le contact entre fil de chaîne et fil de trame peut être imparfait. Le modèle proposé permet d’insérer un patin de matrice entre ces deux constituants de manière à simuler la présence d’une résistance thermique de contact.
- enfin, il est possible d’attribuer des pas de tissage, des sections et des propriétés de fils différentes pour les directions chaîne et trame afin de pouvoir modéliser des plis hybrides ou non équilibrés.

### 2.3.2 Représentation des géométries idéalisées

La première phase du travail a consisté à donner une représentation de la géométrie idéalisée des renforts fibreux à l'aide du module de dessin intégré au code de calcul employé (CAST3M - logiciel CEA).

#### Définition et maillage des cellules élémentaires

Ce sont 32 cellules élémentaires parallélépipédiques, représentant l'entrelacement de demi-fils enrobés dans une matrice, qui ont été construites par opérations de symétrie/translation à partir des quatre types génériques définis à la figure 2.15. Cet ensemble de cellules a été judicieusement choisi de façon à permettre la représentation de la totalité des familles d'architectures textiles 2D lorsque celles-ci vont être juxtaposées les unes aux autres.

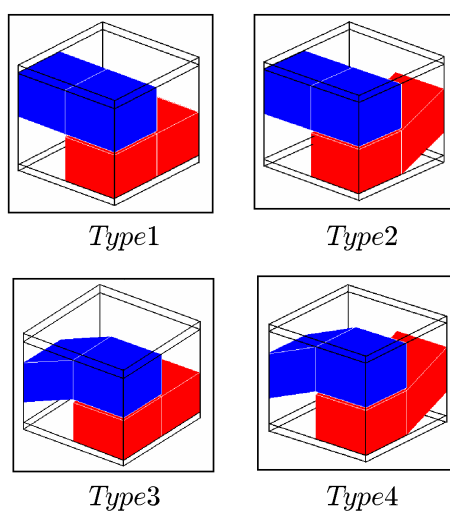


FIG. 2.15 – Représentation des quatre types de cellules élémentaires génériques. Les couleurs rouge et bleu symbolisent les fils de trame et chaîne - la matrice n'est pas matérialisée sur ces croquis puisqu'elle correspond simplement au reste de la cellule.

La création et le maillage (fils et matrice) de chacune des cellules génériques sont réalisés indépendamment. Face aux difficultés liées à la complexité des géométries dessinées et afin de garantir un maillage régulier, nous n'avons pas recouru au mailleur 3D automatique. La solution adoptée a été de définir en premier lieu des surfaces maillées constitutives d'éléments de structures puis de les traduire selon telle ou telle direction. En procédant ainsi, nous générons en outre des volumes dont le maillage est parfaitement contrôlé.

Pour des raisons de symétrie évidente, une décomposition des cellules élémentaires en quatre sous-domaines (numérotés de 1 à 4 sur la figure 2.16) a permis d'en faciliter la construction. L'architecture et le maillage de la sous-cellule 2 sont détaillés ci-dessous à titre d'exemple. Six éléments constituent cette sous-cellule : deux patins de matrices inter-plis (représentés en jaune), deux pièces de matrice (représentés en blanc), l'élément correspondant au fil sur  $x$  (représenté en rouge) ainsi que le prolongement du patin de matrice inter-fils (représenté en jaune) permettant la prise en compte d'une résistance thermique de contact à ce niveau.

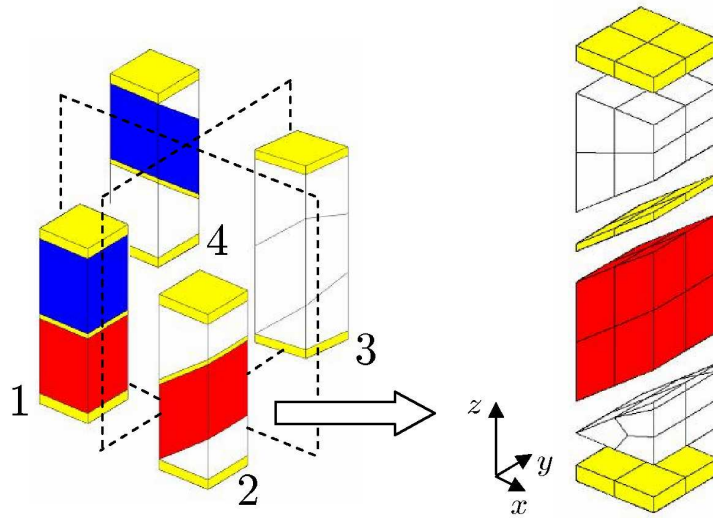


FIG. 2.16 – Construction des cellules élémentaires maillées.

### Paramétrage de la géométrie et choix de la sections de fils

Un des aspects intéressants de la stratégie de maillage employée est donné par la possibilité d'ajuster les grandeurs géométriques caractérisant les structures composites. Le pas de tissage ( $p$ ), les dimensions des fils (grand axe  $a$  et petit axe  $b$ ) ainsi que les épaisseurs de matrices inter-fils ( $r$ ) et inter-plis ( $s$ ) sont en effet entièrement paramétrables. La figure 2.17a localise ces variables sur une cellule unitaire. Bien entendu, les données sur l'axe  $x$  sont indépendantes des données sur l'axe  $y$  afin de permettre la représentation de tissus hybrides ou non équilibrés.

Par ailleurs, une section de fil « rectangulaire » telle qu'elle est décrite jusqu'ici, n'offre qu'une représentation très idéale du problème. La définition de géométries de section variées étant tout à fait compatible avec notre logique de construction, trois nouvelles sections qualifiées de sections « lenticulaire », « parabolique » et « héli-parabolique » ont été préprogrammées (voir FIG. 2.17b).

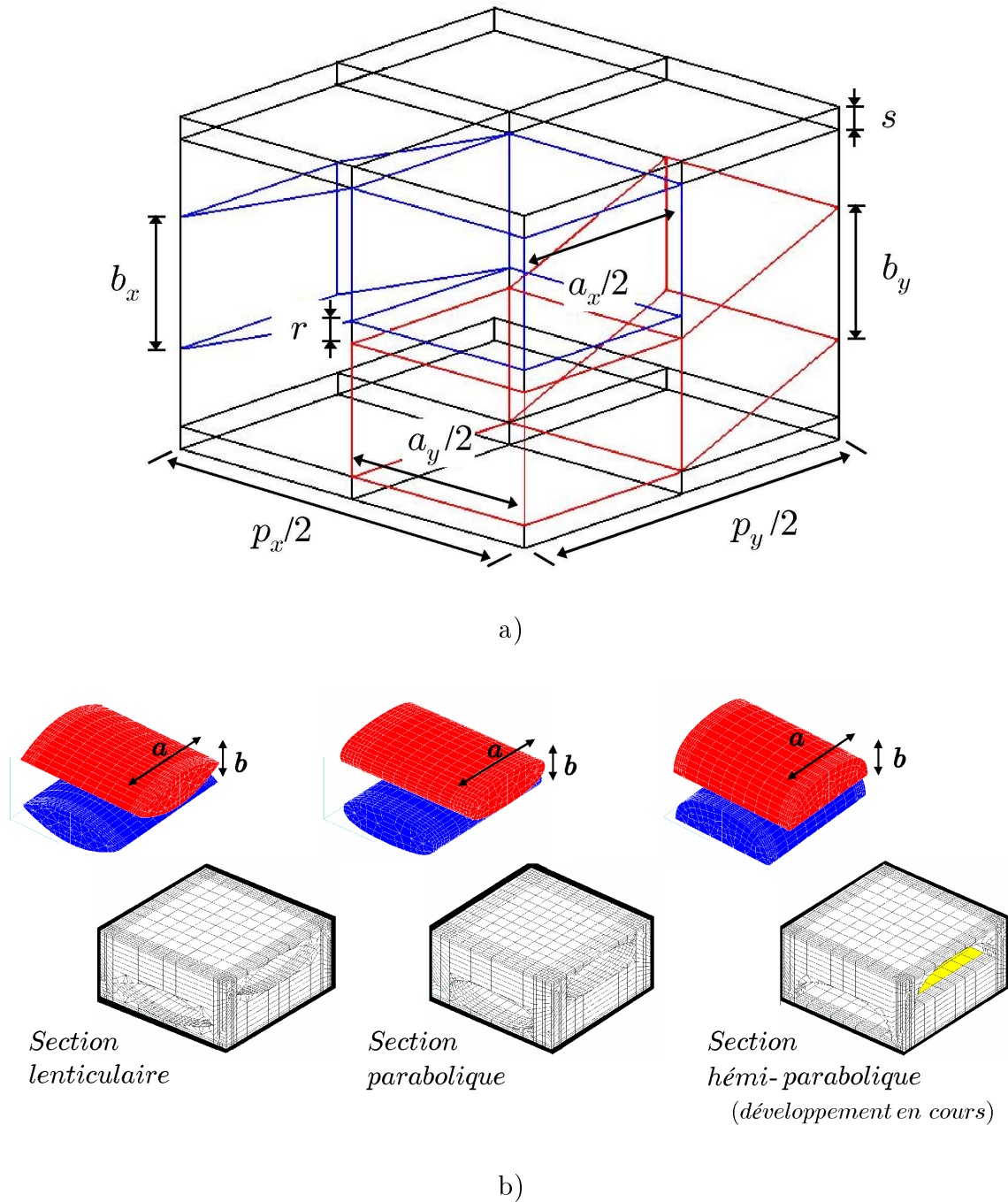


FIG. 2.17 – a) Paramétrage de la géométrie d'une cellule unitaire, b) représentation des sections de fils préprogrammés - maillage des fils et de la matrice.

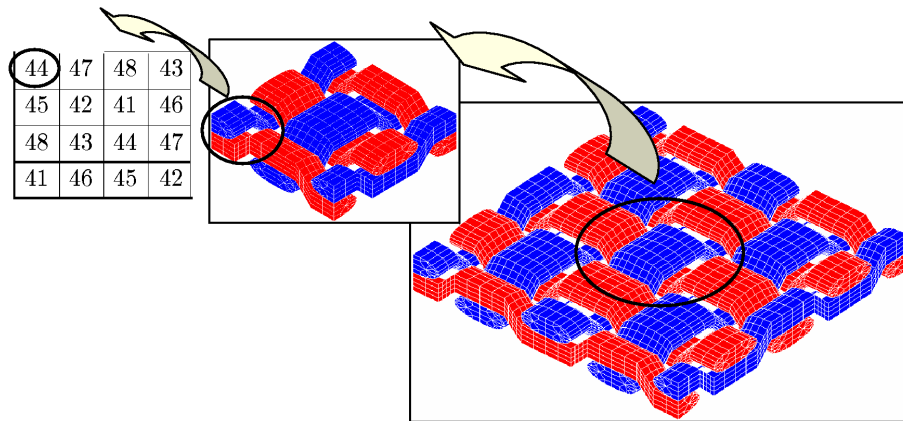


FIG. 2.18 – Architecture taffetas - motif périodique préprogrammé pour une section de fil « parabolique » et table de localisation des cellules.

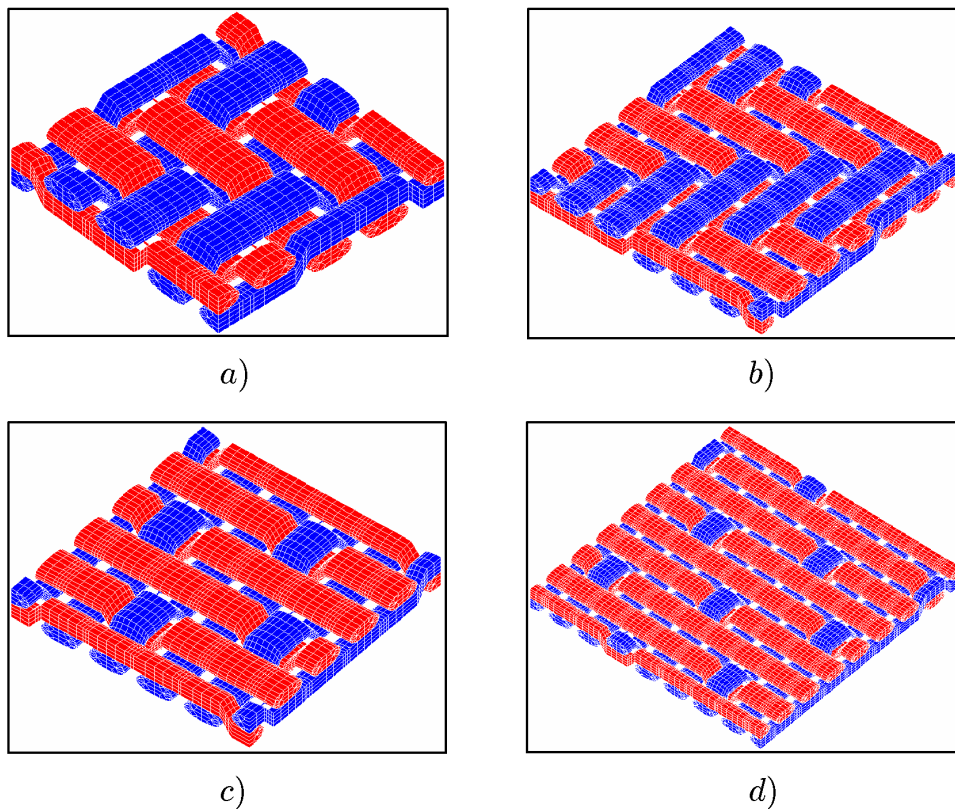


FIG. 2.19 – Architectures préprogrammées - motifs périodiques des tissus a) sergé 2-2, b) sergé 3-3, c) satin 5-3, d) satin 8-3 pour une section de fil « parabolique ».



## Génération des motifs périodiques

Les cellules élémentaires à présent définies et maillées, la dernière partie du programme est consacrée à leur agencement pour générer les motifs périodiques représentatifs des tissus. Chacune d'entre elles étant repérée par un numéro attribué en fonction de la classe dont elles dépendent, la lecture d'un tableau de numéros permet la construction du motif. Notons que la continuité des éléments aux interfaces est garantie par l'élimination des noeuds communs.

Les motifs périodiques préprogrammés sont ceux des tissus les plus répandus : le taffetas, les sergés 2-2 et 3-3, les satins 5-3 et 8-3. Ceux-ci sont représentés sur les figures 2.18 et 2.19 .

### 2.3.3 Résolution du problème thermique

Une fois la géométrie idéalisée des motifs périodiques parfaitement définie, le calcul d'homogénéisation thermique peut être envisagé. Pour cela, un modèle de comportement thermique est spécifié pour chacun des constituants du composite étudié. Pour les cas traités, les fils sont de nature orthotrope ( $\lambda_{F,L}$ ,  $\lambda_{F,T}$ ) et la matrice isotrope<sup>2</sup> ( $\lambda_m$ ).

### Calcul du tenseur de conductivité effectif

La résolution du problème thermique est réalisée par application de la méthode de corrélation flux/force (cf § 2.1.2). Les composantes du tenseur de conductivité effectif des plis sont obtenues en réalisant trois expériences numériques, lesquelles consistent à appliquer successivement un gradient de température dans les trois directions de l'espace, sur le motif périodique du tissu considéré. Dans ce cas précis, les deux directions de tissage (chaîne et trame) ainsi que la direction perpendiculaire au plan définissent les trois directions principales du tenseur de conductivité. Ces directions étant parallèles aux axes du repère, seuls les termes diagonaux sont non nuls. Toutefois, toutes les composantes sont systématiquement déterminées afin de vérifier que les termes extra-diagonaux soient justement bien négligeables. Le maillage étant entièrement paramétrable, le nombre d'éléments est ajusté jusqu'à convergence des résultats.

Si les plis sont équilibrés et supposés sans désorientation, alors la conductivité effective du composite est identique à celle du pli. Dans le cas contraire, elle est déduite par un développement analytique : c'est notre troisième changement d'échelle.

---

<sup>2</sup>En présence de charges ou de porosités, un calcul préalable de conductivité thermique équivalente peut être réalisé à l'aide du modèle analytique de Maxwell-Eucken [97] (cf applications, chapitre 5).

Soit  $[\Lambda]_{P,i}^\circ$  le tenseur de conductivité du  $i^{eme}$  pli dans son repère propre. Connaissant l'orientation  $\theta_i$  de ce pli, il est facile de déduire son tenseur de conductivité dans le repère du composite par la relation suivante :

$$[\Lambda]_{P,i} = \begin{bmatrix} \lambda_{i,xx}^\circ \cos^2\theta_i + \lambda_{i,yy}^\circ \sin^2\theta_i & (\lambda_{i,yy}^\circ - \lambda_{i,xx}^\circ) \cos\theta_i \sin\theta_i & 0 \\ (\lambda_{i,yy}^\circ - \lambda_{i,xx}^\circ) \cos\theta_i \sin\theta_i & \lambda_{i,yy}^\circ \cos^2\theta_i + \lambda_{i,xx}^\circ \sin^2\theta_i & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{i,zz}^\circ \end{bmatrix} \quad (2.7)$$

Il s'agit ensuite de superposer les  $N$  plis du stratifié, dont les épaisseurs  $e_i$  peuvent être différentes, pour obtenir le tenseur de conductivité effective du composite :

$$[\Lambda]_C = \begin{bmatrix} \sum_{i=1}^N e_i \lambda_{i,xx} / \sum_{i=1}^N e_i & \sum_{i=1}^N e_i \lambda_{i,xy} / \sum_{i=1}^N e_i & 0 \\ \sum_{i=1}^N e_i \lambda_{i,xy} / \sum_{i=1}^N e_i & \sum_{i=1}^N e_i \lambda_{i,yy} / \sum_{i=1}^N e_i & 0 \\ 0 & 0 & \sum_{i=1}^N e_i / \sum_{i=1}^N \frac{e_i}{\lambda_{i,zz}} \end{bmatrix} \quad (2.8)$$

### 2.3.4 Validation et application à l'optimisation thermique

#### Validation à partir de données bibliographiques

La validation du modèle est réalisée sur deux cas : (i) un composite unidirectionnel pour lequel la solution de référence est donnée par un modèle analytique (arrangement carré de fils) [36] et (ii) un composite à renfort taffetas (fibre de kevlar, carbone ou verre + résine époxy) pour lequel des données expérimentales et des résultats de calculs sont proposés par Gowayed et al. [96]. Les résultats obtenus dans le cas du composite UD (FIG. 2.20a) sont en bon accord avec ceux relevés dans la littérature. Dans le cas du taffetas, la comparaison est plus difficile car les paramètres de tissage (section et pas), qui ne sont pas indiqués explicitement dans l'étude de Gowayed, ont été mesurés directement sur une micrographie publiée dans [96]. Ces paramètres, qui devraient évoluer en fonction de la fraction volumique de fibres dans le composite, sont supposés constants ici, faute de renseignements supplémentaires. Globalement, les résultats obtenus demeurent proches des mesures réalisées (FIG. 2.20b).

#### Influence de l'architecture textile

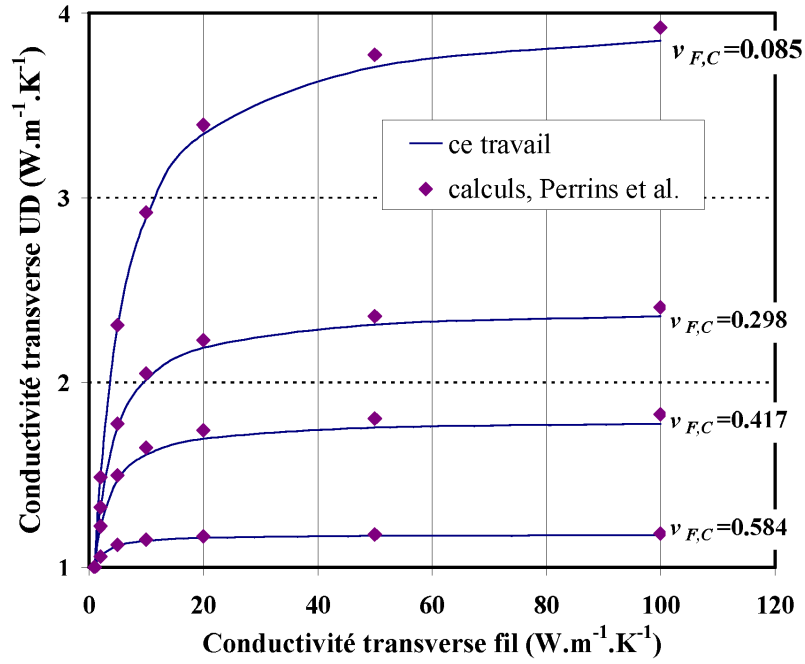
Lorsqu'il s'agit de prédimensionner une structure composite vis-à-vis d'une application précise, l'utilisation de ce modèle trouve là un fort intérêt. A titre d'exemple, nous nous proposons ici d'étudier l'influence de l'architecture textile sur le transfert de chaleur au sein de ces milieux. Pour cela, nous comparons entre elles les conductivités thermiques calculées dans le plan ( $\lambda_{\parallel}$ ) et perpendiculaires au plan ( $\lambda_{\perp}$ ) des

plis pour les tissus préprogrammés (taffetas, sergés, satins) et pour les trois types de sections de fil rectangulaires, paraboliques et lenticulaires. Les plis sont supposés équilibrés et sans désorientation. Les calculs sont réalisées avec les données suivantes : pas de tissage 0,44 mm, largeur des fils 0,35 mm, hauteur des fils 0,15 mm, épaisseur des patins de matrice séparant les plis  $2,5 \times 10^{-3}$  mm et les fils  $7,1 \times 10^{-3}$  mm, conductivité thermique longitudinale des fils  $3,76 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , transverse des fils  $0,89 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et de la matrice  $0,72 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ .

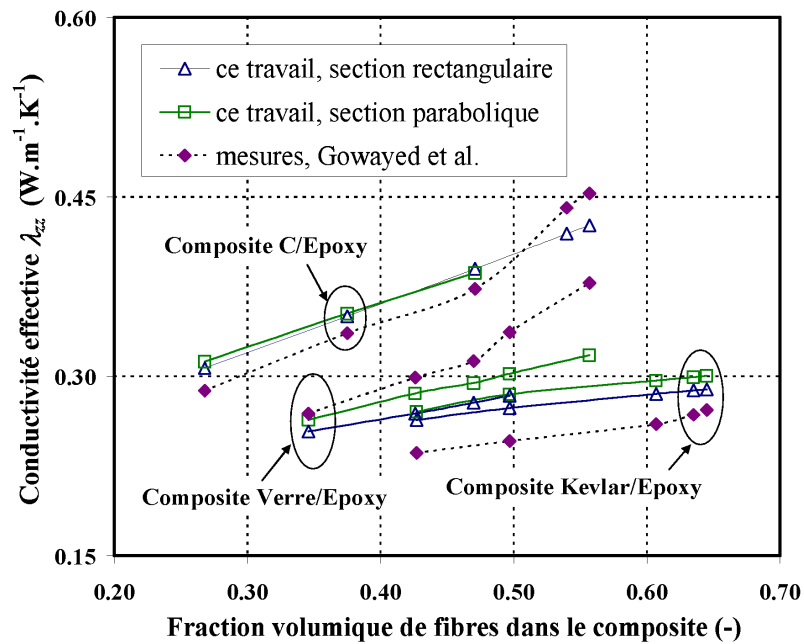
Les résultats obtenus (FIG. 2.21) montrent que :

- (i) Quelle que soit la section de fils,  $\lambda_{\parallel}$  diminue lorsque le nombre d'embuvages des tissus augmente alors que le phénomène inverse apparaît pour  $\lambda_{\perp}$ . Cela met bien en évidence le rôle important joué par l'inclinaison des fils dans le transfert de chaleur ;
- (ii) par conséquent, l'écart entre  $\lambda_{\parallel}$  et  $\lambda_{\perp}$  est d'autant plus important que le nombre d'embuvages est faible (0,764 si rectangulaire, 0,642 si parabolique et 0,501 si lenticulaire).
- (iii) pour un même tissu, les conductivités thermiques diffèrent selon la géométrie des sections de fils. Les valeurs les plus élevées sont celles obtenues pour les sections dont la fraction volumique de fibre est la plus importante ( $\alpha_{rect} > \alpha_{para} > \alpha_{lenti}$ ).

*Cette étude donne un aperçu des nombreuses possibilités d'utilisation du modèle développé. L'influence de l'architecture sur le transfert de chaleur est ici étudiée pour différentes sections de fils. D'autres paramètres tels que la nature des constituants, les fractions volumiques de fibres influençant tout autant le transfert thermique peuvent également être regardés. Toutefois, l'objectif ne portant pas ici sur la conception des structures, ce soin est laissé aux ingénieurs des bureaux d'études des partenaires industrielles.*



a) Cas du composite UD



b) Cas du taffetas

FIG. 2.20 – Validation du modèle à partir de données bibliographiques.

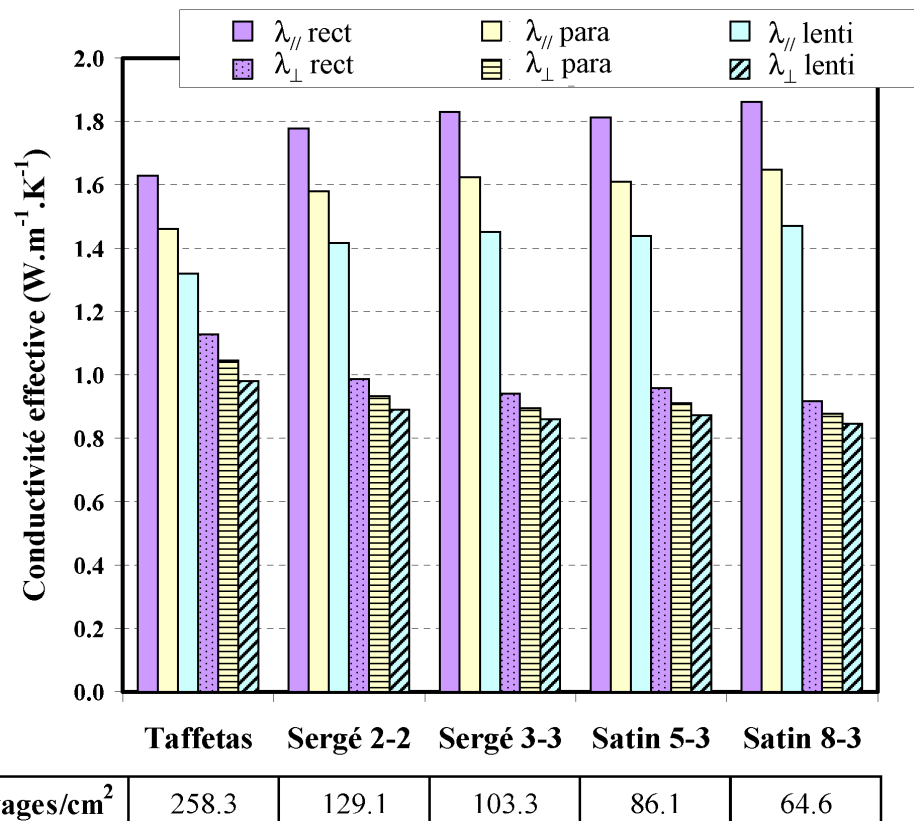


FIG. 2.21 – Influence de l'architecture textile sur la conductivité thermique de composites à renforts 2D. Trois sections de fils sont étudiées : rectangulaires (rect), paraboliques (para) et lenticulaires (lenti).

## 2.4 Conclusion du chapitre

La prévision de la conductivité thermique effective des composites stratifiés 2D est abordée dans ce chapitre par une stratégie de modélisation multiéchelle. L'originalité des travaux proposés porte sur l'établissement de deux modèles numériques distincts, adoptés chacun pour leur pertinence à décrire le transfert thermique au travers les différentes échelles d'hétérogénéités.

Par l'application d'une méthode mettant en corrélation les flux et les gradients thermiques sur un motif périodique représentatif, le premier modèle considéré permet le calcul de la conductivité thermique transverse des fils. Celui-ci s'appuie directement sur une micrographie du matériau, nous préservant ainsi de toute hypothèse sur l'arrangement ou la géométrie des sections de fibres. Nous retiendrons pour son utilisation l'importance donnée à la résolution optique de l'image ainsi qu'à l'incertitude numérique pour le calcul par éléments finis. Le second modèle présenté est dédié à la prévision des conductivités effectives à l'échelle des plis, voire à l'échelle du composite lorsque ces derniers sont équilibrés et supposés sans désorientation. Sa particularité tient au fait qu'il soit entièrement paramétrable. Il constitue par conséquent un outil pratique pour le prédimensionnement des structures composites.

Ces travaux de modélisation thermique nous permettent également de mieux appréhender le comportement thermique des matériaux composites vis-à-vis de leur caractérisation en température. L'enseignement principal que nous retiendrons pour la suite de l'étude concerne notamment le choix des dimensions d'échantillons. Pour que ceux-ci soient représentatifs d'une structure composite dans son ensemble, les résultats obtenus dans ce chapitre démontrent que leur taille doit être suffisamment importante (cf application du modèle de premier changement d'échelle sur le composite UD). Cela nous conforte dans nos choix concernant l'adoption d'une technique de mesure par contact. La facilité de mise en oeuvre avec des échantillons de grande dimension y est beaucoup plus importante que dans le cas de méthodes sans contact (maîtrise des conditions aux limites, homogénéité thermique de l'échantillon, etc).



# Chapitre 3

## Démarche et méthode pour la caractérisation thermique en température

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction sur la démarche entreprise . . . . .</b>	<b>97</b>
3.1.1	Objectifs . . . . .	97
3.1.2	Mise en place de la méthode . . . . .	98
3.1.3	Configuration expérimentale retenue . . . . .	99
<b>3.2</b>	<b>Méthode du plan chaud avec mesure de deux températures . . . . .</b>	<b>101</b>
3.2.1	Description et principe . . . . .	101
3.2.2	Modélisation de l'expérience . . . . .	102
3.2.3	Estimation des propriétés thermophysiques . . . . .	104
<b>3.3</b>	<b>Applications à température ambiante . . . . .</b>	<b>109</b>
3.3.1	Matériaux étudiés . . . . .	109
3.3.2	Choix de l'isolant thermique et méthode pour la détermination de son effusivité . . . . .	110
3.3.3	Résultats expérimentaux - validation du modèle . . . . .	111
<b>3.4</b>	<b>Conclusion du chapitre . . . . .</b>	<b>117</b>

---





Ce chapitre s'inscrit dans la continuité de la revue bibliographique conduite sur les techniques de caractérisation thermique en température. Il est entièrement dédié à la mise en place d'une nouvelle méthode de mesure de propriétés thermophysiques par contact satisfaisant les contraintes afférentes aux hautes températures. La méthode s'adresse aux milieux solides isotropes ou orthotropes.

En préambule, les motivations de notre démarche sont exposées. Une brève description du schéma expérimental et des outils nécessaires à la réalisation de ce travail est ensuite proposée pour déboucher sur l'établissement de la méthode. Les grandeurs visées sont l'effusivité et la conductivité thermique. Une validation sur différents matériaux à température ambiante est présentée au terme de ce chapitre.

## 3.1 Introduction sur la démarche entreprise

### 3.1.1 Objectifs

Comme l'atteste le premier chapitre, la caractérisation thermique de matériaux solides offre une importante diversité de méthodes de mesure. Bon nombre de développements permettent d'atteindre les caractéristiques recherchées avec une précision somme toute très bonne. L'objectif du travail réalisé dans ce qui suit n'est donc pas de concevoir une méthode de caractérisation supplémentaire à mettre en concurrence avec les précédentes mais de proposer une méthode par contact adaptée à la mesure à haute température.

Dans ce contexte particulier, où les contraintes de temps et de conception ne sont plus les mêmes qu'à température ambiante, nous avons cherché davantage à développer une technique simple et souple dans son utilisation (nombre faible de mesures, échantillons interchangeables, etc.) permettant l'accès à un maximum de renseignements tout en offrant un niveau de précision accru.

Le choix d'une méthode par contact correspond parfaitement aux exigences des hautes températures qui nécessitent une certaine robustesse des appareillages et instruments de mesure. Pour atteindre un niveau de performance équivalent aux méthodes usuelles, il a ainsi été préférable de privilégier la complexité des modèles au détriment de l'utilisation de systèmes technologiques pointus (FIG. 3.1). Cette préoccupation a suscité par exemple la prise en compte systématique de paramètres tels que les résistances thermiques de contact ou l'inertie des sondes rarement considérés dans les modèles d'identification « idéaux ».

Ces critères de simplicité et de performance se confondent avec ceux de la démarche de Y.Jannot, employée pour développer des dispositifs de mesure à moindre

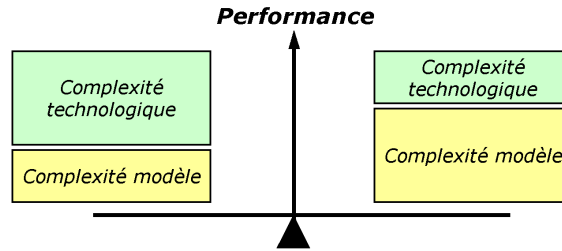


FIG. 3.1 – Conceptualisation de la démarche empruntée.

coût pour les pays en voie de développement. C'est pourquoi, ce travail s'appuie sur une étude récente proposée par cet auteur [98], qui établit une méthode de caractérisation thermique fondée sur l'utilisation de sonde thermique et applicable sur une large gamme de conductivité.

### 3.1.2 Mise en place de la méthode

Le principe de la plupart des méthodes de caractérisation thermique repose sur ce même schéma expérimental, consistant à perturber thermiquement un échantillon et à relever la réponse à l'excitation (flux ou température) au cours du temps (cf § 1.3.1). Il en est ainsi pour la méthode proposée ; l'expérience prévoit d'être réalisée en trois temps :

1. l'échantillon est porté à la température de mesure  $T_{mes}$  (de 20°C à 1500°C) dans un four ;
2. il est excité thermiquement à l'aide d'un système chauffant en contact avec l'échantillon, la réponse en température est enregistrée simultanément ;
3. l'analyse numérique du signal mesuré permet de déduire les propriétés thermophysiques de l'échantillon.

**Identification des propriétés** Le problème d'identification des propriétés à partir de la mesure de température est abordé ici par méthode inverse en utilisant un modèle direct correspondant à l'expérience. Son écriture nécessite une parfaite connaissance des transferts thermiques qui s'opèrent au sein du milieu étudié et fait donc intervenir la résolution de l'équation de la chaleur.

Compte tenu du caractère monodimensionnel de l'expérience envisagée (cf § 3.1.3), nous nous sommes tournés vers le formalisme des quadripôles thermiques pour résoudre cet exercice. Ce moyen de résolution analytique offre une représentation physique simple et parlante du problème. Il permet également d'introduire de manière très souple les imperfections du système (résistance de contact, pertes thermiques, etc.).

En considérant un transfert de chaleur unidirectionnel par conduction, le principe fondamental en régime transitoire de ce formalisme est présenté à l'annexe A. Les différents quadripôles nécessaires à l'établissement du modèle sont exposés.

### 3.1.3 Configuration expérimentale retenue

#### Moyen d'excitation thermique

**Etendue géométrique** Notre réflexion nous a orientés vers l'utilisation d'une source d'excitation plane. Deux raisons motivent ce choix : l'isolation électrique et la mise en oeuvre technologique paraissent a priori plus simple à réaliser. Contrairement à une excitation linéique (cf méthode du fil chaud), aucun rainurage des pièces n'est requis dans ce cas pour assurer le bon contact entre échantillon(s) et élément chauffant.

**Intensité et variation temporelle** L'intensité et la variation temporelle de l'excitation thermique sont étroitement liées car il faut apporter une puissance suffisante à l'échantillon pour voir sa température augmenter de façon significative, c'est-à-dire suffisamment pour pouvoir être mesurée avec précision. L'excitation continue est la seule qui permette une identification directe de la conductivité.

#### Moyens de mesure de la température

Si le choix de la source de chaleur est unique, nous voyons trois moyens pouvant être utilisés pour rendre compte de l'évolution de la température de l'échantillon sous l'effet de l'excitation thermique. La mesure peut être réalisée de manière :

**ponctuelle** : dans ce cas, c'est un couple thermoélectrique qui est utilisé. Pour les niveaux de température escomptés, l'emploi de métaux précieux tels que le platine, le tungstène ou le rhénium est de mise. Même si le coût élevé et la faible durée de vie de ces derniers sont souvent rédhibitoires à leur utilisation, ils permettent de mesurer des températures supérieures à 1000°C avec une incertitude et un temps de réponse acceptable.

**linéique** : dans ce cas, c'est la mesure de la résistance électrique d'un filament résistif contenu dans l'échantillon qui permet l'accès à la température via un étalonnage résistance/température effectué au préalable. L'idée d'insérer une fibre de carbone, choisie selon ses propriétés mécaniques et résistives, permettrait d'atteindre un niveau de température soutenu.

**surfactive** dans ce cas, c'est la mesure de la résistance électrique directement du système chauffant qui permet l'accès à la température via un étalonnage résistance/température effectué au préalable.

TAB. 3.1 – Comparaison et caractéristiques des trois moyens envisagés pour la mesure de température.

	<b>Thermocouple HT</b>	<b>Monofilament de carbone</b>	<b>Plan chauffant en carbone</b>
<i>Grandeur mesurée</i>	ddp (mV)	Résistance ( $\Omega$ )	Résistance ( $\Omega$ )
<i>Etendue géométrique</i>	ponctuelle	linéique	surfaccique
<i>Diamètre/épaisseur</i>	0.7 mm	10 à 15 $\mu\text{m}$	0.25 mm
<i>Limite théorique d'utilisation</i>	1800 à 2000°C	2500°C	2500°C
<i>Sensibilité moyenne sur la plage 20-1500°C</i>	15 $\mu\text{V}/^\circ\text{C}$	35 $\Omega/^\circ\text{C}$ <sup>a</sup>	0,05 $\Omega/^\circ\text{C}$ <sup>b</sup>
<i>Temps de réponse</i>	50 ms	1 $\mu\text{s}$	-
<i>Inconvénients</i>	Faible durée de vie, coût, rainurage et étalonnage au préalable	fragilité, rainurage et étalonnage au préalable	étalonnage au préalable

<sup>a</sup>Soit une sensibilité moyenne équivalente à 350  $\mu\text{V}/^\circ\text{C}$  avec un montage 4 fils et une intensité de 10  $\mu\text{A}$

<sup>b</sup>Soit une sensibilité moyenne équivalente à 0,50  $\mu\text{V}/^\circ\text{C}$  avec un montage 4 fils et une intensité de 10  $\mu\text{A}$

Le tableau 3.1 synthétise les caractéristiques de ces différents moyens. Il fait apparaître notamment les sensibilités moyennes et les temps de réponse calculés pour deux d'entre eux. En première approximation, le suivi de la température grâce aux fibres de carbone offre une meilleure qualité de mesure.

Par ailleurs, afin d'intégrer au mieux le caractère hétérogène des composites, il est souhaitable que la mesure ait une étendue suffisamment grande. Pour cette raison, les options linéique et surfaccique seront préférées. L'utilisation de couples thermoélectriques restera réservée aux matériaux isotropes.

### Environnement de l'échantillon

Pour permettre une identification précise des propriétés thermiques, il est nécessaire de maîtriser les conditions aux limites imposées aux frontières de l'échantillon. La méthode développée étant destinée à la caractérisation de matériaux à tendance plutôt conductrice, il a été judicieux de mettre à profit le contraste entre la conductivité thermique des échantillons et celle d'un isolant thermique placé autour.

## 3.2 Méthode du plan chaud avec mesure de deux températures

### 3.2.1 Description et principe

Le dispositif proposé est représenté sur la figure 3.2. Il est constitué d'un échantillon parallélépipédique et d'une résistance électrique plane (sonde résistive) placée au contact de ce dernier, les deux éléments étant confinés dans un isolant thermique d'effusivité connue.

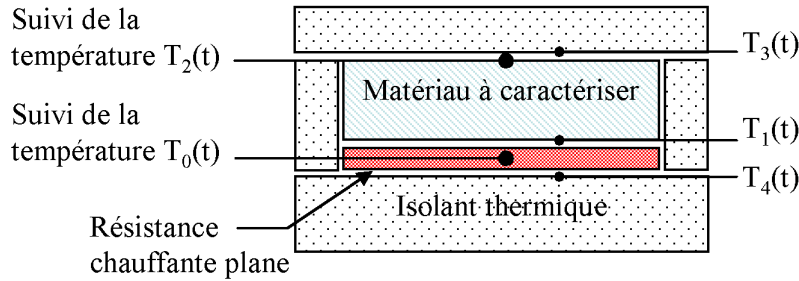


FIG. 3.2 – Schéma du dispositif expérimental.

Plan chauffant et échantillon possèdent la même surface pour permettre un transfert unidirectionnel du flux de chaleur. Deux mesures de température sont effectuées durant l'expérience, l'une en « face avant » :  $T_0$ , mesure réalisée sur le plan chauffant, l'autre en « face arrière » :  $T_2$ , mesure réalisée sur la face non chauffée de l'échantillon.

Le principe de la méthode consiste à utiliser le thermogramme obtenu en « face avant » au début de l'expérience pour réaliser une estimation de l'effusivité thermique  $E$  du matériau étudié, de la capacitance thermique  $mc_p$  de la sonde et des résistances thermiques de contact  $Rc$  de part et d'autre du plan chauffant. A partir des valeurs identifiées, l'exploitation du thermogramme en « face arrière » permettra ensuite d'estimer aux temps longs la conductivité thermique  $\lambda$  de l'échantillon. Des lors, il deviendra possible de déduire les valeurs de diffusivité thermique  $a$  et de chaleur volumique  $\rho.c_p$  en posant :

$$a = \frac{\lambda^2}{E^2} \quad \text{et} \quad \rho c_p = \frac{E^2}{\lambda} \quad (3.1)$$

### 3.2.2 Modélisation de l'expérience

En considérant la sonde comme un système mince (pas de gradient dans l'épaisseur), le formalisme des quadripôles thermiques (voir Annexe A) nous permet de relier sous forme matricielle les grandeurs d'entrée aux grandeurs de sortie. En première approximation, les pertes latérales par convection sont négligées. Ainsi, en respectant les notations de la figure 3.2, nous pouvons écrire les relations :

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \phi_{01} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ mc_p p & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & Rc_1 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & Rc_2 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_3 \\ E_i S \sqrt{p\theta_3} \end{bmatrix} \quad (3.2)$$

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \phi_{04} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & Rc_3 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_4 \\ E_i S \sqrt{p\theta_4} \end{bmatrix} \quad (3.3)$$

Avec :

- $\theta_i$  Transformée de Laplace de la différence  $T_i(t) - T_i(t=0)$
- $\phi_{0i}$  Transformée de Laplace de la différence  $\varphi_{0i}(t) - \varphi_{0i}(t=0)$
- $Rc_1$  Résistance de contact à l'interface résistance chauffante/échantillon
- $Rc_2$  Résistance de contact à l'interface échantillon/isolant thermique
- $Rc_3$  Résistance de contact à l'interface résistance chauffante/isolant thermique
- $m$  Masse du système « capteur de température + résistance chauffante »
- $c_p$  Capacité calorifique du système « capteur de température + résistance chauffante »
- $E, a$  Effusivité et diffusivité thermique du matériau à caractériser
- $\lambda$  Conductivité thermique du matériau à caractériser
- $E_i$  Effusivité thermique de l'isolant
- $p$  Variable de Laplace
- $S$  Surface de la résistance chauffante
- $\varphi_0$  Puissance électrique dissipée dans la résistance chauffante

et  $\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} ch(qe) & \frac{1}{\lambda q S} sh(qe) \\ \lambda q S ch(qe) & ch(qe) \end{bmatrix}$  la matrice quadripolaire où  $q = \sqrt{\frac{p}{a}}$

Pour gagner en clarté d'écriture, simplifions la première relation matricielle (3.2) comme suit :

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \phi_{01} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{03} & B_{03} \\ C_{03} & D_{03} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_3 \\ E_i S \sqrt{p\theta_3} \end{bmatrix} \quad (3.4)$$

en posant

$$\begin{aligned} A_{03} &= A + Rc_1 C \\ B_{03} &= (A + Rc_1 C) Rc_2 + (B + Rc_1 D) \\ C_{03} &= mc_p p A + (1 + mc_p p Rc_1) C \\ D_{03} &= [mc_p p A + (1 + mc_p p Rc_1) C] Rc_2 + mc_p p B + (1 + mc_p p Rc_1) D \end{aligned}$$

Le bilan énergétique appliqué à la résistance chauffante,

$$\frac{\varphi_0}{p} = \phi_{01} + \phi_{04} \quad (3.5)$$

permet alors d'exprimer, dans l'espace de Laplace, l'élévation de la température de la face chauffée  $\theta_0$  en fonction de la puissance dissipée :

$$\theta_0(p) = \frac{\varphi_0}{p} / \left[ \frac{C_{03} + D_{03}E_iS\sqrt{p}}{A_{03} + B_{03}E_iS\sqrt{p}} + \frac{E_iS\sqrt{p}}{1 + Rc_3E_iS\sqrt{p}} \right] \quad (3.6)$$

De la même manière, la modélisation du transfert thermique entre la résistance chauffante et la face non chauffée à la température  $T_2$  du matériau à caractériser permet d'écrire :

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \phi_{01} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ mc_p p & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & Rc_1 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_2 \\ \phi_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{02} & B_{02} \\ C_{02} & D_{02} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_2 \\ \phi_2 \end{bmatrix} \quad (3.7)$$

en posant

$$\begin{aligned} A_{02} &= A + Rc_1 C \\ B_{02} &= B + Rc_1 D \\ C_{02} &= mc_p p A + (1 + mc_p p Rc_1) C \\ D_{02} &= mc_p p B + (1 + mc_p p Rc_1) D \end{aligned}$$

La combinaison avec la relation matricielle (3.4), nous permet d'exprimer, dans l'espace de Laplace, l'évolution de la température de la face non chauffée  $\theta_2$  en fonction de  $\theta_0$  :

$$\theta_2(p) = \left[ D_{02} - B_{02} \frac{C_{03} + D_{03}E_iS\sqrt{p}}{A_{03} + B_{03}E_iS\sqrt{p}} \right] \theta_0(p) \quad (3.8)$$

Le retour dans l'espace réel n'étant pas accessible analytiquement, il s'effectue numériquement en utilisant la méthode de Favert-Stehfest et Woo [40] à 10 termes (cf Annexe A). Les températures  $T_1$  et  $T_2$  sont données par l'expression :

$$T_i(t) = \frac{\ln(2)}{t} \sum_{j=1}^{10} V_j \theta_i \left( \frac{j \ln(2)}{t} \right), V_j \text{ étant les coefficients de Stehfest} \quad (3.9)$$

### Prise en compte des pertes convectives latérales

Dans notre modélisation, les pertes convectives latérales peuvent être prises en compte de manière simple grâce au modèle de l'ailette. Si nous considérons que la température est uniforme dans tout plan parallèle à la face chauffée de l'échantillon,



toutes les formulations précédentes restent valables en effectuant le changement de variable :

$$p \longrightarrow p + \frac{haP}{\lambda S} \quad (3.10)$$

où  $h$  est le coefficient d'échange convectif et  $P$  le périmètre de la surface de l'échantillon. Compte tenu des propriétés de la transformation de Laplace, cela revient à multiplier la solution  $T(t)$  obtenue avec l'algorithme de Stehfest par le terme :

$$\exp\left(-\frac{haP}{\lambda S}t\right)$$

### 3.2.3 Estimation des propriétés thermophysiques

La résolution du problème direct conduit, dans l'espace de Laplace, à deux expressions analytiques de la température en face avant (3.6) et en face arrière (3.8), fonction de la variable de Laplace, de la puissance dissipée dans la sonde et d'un certain nombre de paramètres contenus dans le vecteur  $\beta^1$  :

$$\beta = (E, \lambda, Rc_1, Rc_2, Rc_3, h)$$

L'estimation des propriétés thermophysiques va consister à déterminer ce vecteur tel que les températures calculées à partir des modèles directs coïncident au mieux avec les mesures expérimentales.

#### Etude de sensibilité

En premier lieu, il s'agit de déterminer le domaine temporel pour lequel une variation de chacun des paramètres  $\beta_i$ , indépendamment les uns des autres, entraîne une réponse significative du système. Si un tel intervalle existe, l'identification est possible. Dans le cas contraire, les conditions expérimentales doivent être ajustées.

---

<sup>1</sup>Les pertes convectives latérales sont prises en compte.

Les sensibilités des deux températures aux variations de  $E$ ,  $\lambda$ ,  $Rc_1$ ,  $mc_p$ , et  $h$  sont ainsi calculées en fonction du temps d'expérience par la relation<sup>2</sup> :

$$X_i(t, \beta) = \beta_i \frac{\partial T(t, \beta)}{\partial \beta_i} \quad (3.11)$$

Pour pouvoir les comparer entre elles, nous utilisons une sensibilité réduite.

Ces calculs ont été réalisés sur de nombreux matériaux de nature différente. Présentons ici le cas de deux d'entre eux :

- (i) l'un de conductivité thermique moyenne, une alumine réfractaire<sup>3</sup>,
- (ii) l'autre de conductivité thermique plus élevée, un graphite polycristallin<sup>4</sup>.

Le tableau 3.2 rassemble les propriétés thermophysiques de ces deux spécimens ; les grandeurs nominales relatives aux conditions expérimentales utilisées pour ce calcul figurent dans le second tableau 3.3. Notons que la densité de flux et les épaisseurs des matériaux sont ajustées afin de satisfaire l'hypothèse du milieu semi-infini dans le modèle pendant un temps suffisamment long pour permettre l'exploitation du signal en face avant. Les résultats obtenus sont présentés à la figure 3.3.

TAB. 3.2 – Propriétés thermophysiques des matériaux considérés.

	Conductivité $W.m^{-1}.K^{-1}$	Effusivité $J.m^{-2}.K^{-1}.s^{-\frac{1}{2}}$	Diffusivité $m^2.s^{-1}$
Alumine	5,50	4620	$1,40.10^{-6}$
Graphite	104	12540	$6,90.10^{-5}$

TAB. 3.3 – Données expérimentales utilisées pour l'étude des sensibilités.

	Epaisseur $mm$	Densité de flux $W.m^{-2}$	Surface d'échange $m^2$	$h$ $W.m^{-2}.K^{-1}$	$mc_p$ $J.K^{-1}$	$SRc_1$ <sup>a</sup> $m^2.K.W^{-1}$
Alumine	30	1000	0,05×0,05	4	0,875	0,0015
Graphite	100	2500				

<sup>a</sup>Les valeurs de  $Rc_2$  et  $Rc_3$  sont fixées à  $10^{-10} K.W^{-1}$

<sup>2</sup>Il a été vérifié au préalable que les sensibilités aux résistances de contact avec l'isolant  $Rc_2$  et  $Rc_3$  étaient complètement négligeables.

<sup>3</sup>Alumine réfractaire électrofondue élaborée par Saint Gobain CREE, Jargal M (produit corindon - alumine bêta, contenant 95 %  $Al_2O_3$ , 4 %  $Na_2O$ ).

<sup>4</sup>Graphite polycristallin EDM3 élaboré par POCO.

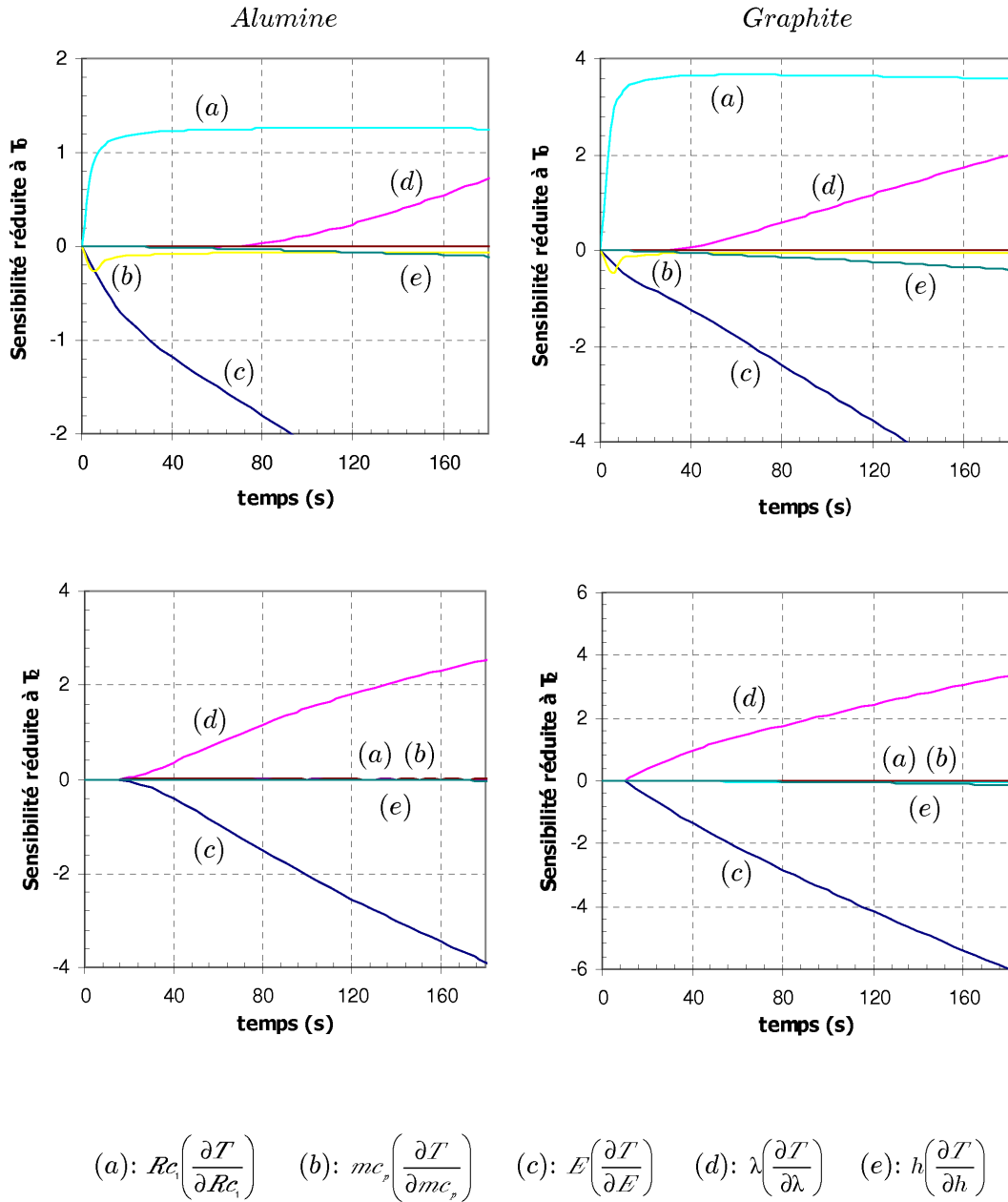


FIG. 3.3 – Sensibilités réduites de  $T_0(t)$  et  $T_2(t)$  aux paramètres  $Rc_1$ ,  $mc_p$ ,  $E$ ,  $\lambda$  et  $h$  pour les matériaux graphite EDM3 et alumine Jargal M.

**Résultats et analyse** Les courbes tracées sont riches en enseignements. Pour ces deux matériaux, il est manifeste que :

- la température  $T_0$  est sensible à la capacitance  $mc_p$  et à la résistance de contact  $Rc_1$  entre l'élément chauffant et l'échantillon en début d'expérience. Aux temps longs, ces deux paramètres n'influencent plus le modèle.
- la sensibilité de  $T_0$  à l'effusivité thermique  $E$  est croissante sur l'ensemble du domaine temporel exploré et décorrélée des sensibilités à  $Rc_1$  et  $mc_p$  aux temps courts.
- la sensibilité de  $T_0$  à la conductivité thermique  $\lambda$  et aux pertes convectives latérales  $h$  (surévaluées dans cette étude) est négligeable pour des temps inférieurs à 40 secondes dans les deux cas. Au delà, la sensibilité à ces deux paramètres est corrélée ce qui rend impossible leur identification séparément<sup>5</sup>.
- la température  $T_2$  n'est sensible qu'aux paramètres effusivité  $E$  et conductivité  $\lambda$  entre 10 et une centaine de secondes. Une faible sensibilité aux pertes convectives latérales est ressentie aux temps très longs.

Cette lecture nous conduit à dégager très clairement une procédure pour l'identification : les trois paramètres, effusivité  $E$ , capacitance  $mc_p$  et résistance de contact  $Rc_1$ , linéairement indépendants, peuvent être identifiés simultanément sur le seul thermogramme  $T_0(t)$  aux temps courts. L'estimation de la conductivité ne pourra se faire qu'à partir du thermogramme  $T_2(t)$  aux temps plus longs, en prenant soin de vérifier l'insensibilité du signal aux pertes convectives.

### Méthode d'estimation des paramètres

Un jeu de valeurs nominales est attribué aux paramètres  $E$ ,  $mc_p$  et  $Rc_1$  du modèle direct, les valeurs des résistances  $Rc_2$  et  $Rc_3$  sont fixées à  $10^{-10} K^{-1}.W^{-1}$ . Par application d'une méthode de minimisation<sup>6</sup>, nous déterminons de nouvelles valeurs de  $E$ ,  $mc_p$  et  $Rc_1$  qui minimisent la somme des écarts quadratiques entre les courbes expérimentale et théorique en face avant entre le début de l'expérience et un temps suffisamment court déterminé par l'étude des sensibilités (de 30 à 50 secondes selon le milieu étudié).

---

<sup>5</sup>La seule détermination envisageable serait le cas où les dimensions transversales des échantillons seraient grandes devant leur épaisseur. Dès lors, la température au centre de l'élément chauffant ne serait pas perturbée par les pertes latérales pendant un temps suffisamment long.

<sup>6</sup>Méthode de type Newton ou résolution dans un système des moindres carrés par la méthode du simplex.

Une valeur initiale de la conductivité  $\lambda$  est attribuée. D'une manière similaire, nous déterminons ensuite par la même méthode la valeur de la conductivité thermique qui minimise la somme des écarts quadratiques entre les courbes expérimentale et théorique en face arrière entre 0 et le temps pour lequel les pertes convectives latérales sont négligeables.

Par itérations successives, nous aboutissons à une estimation précise des deux grandeurs  $E$  et  $\lambda$ .

### Cas des milieux orthotropes

L'orthotropie des milieux composites multiplie le nombre de paramètres à identifier par trois (cf § 1.2.1). En raison du caractère monodimensionnel de l'expérience du plan chaud, l'identification simultanée des trois composantes du tenseur des propriétés n'est pas permise. La solution consiste à réaliser une série de trois expériences où le flux de chaleur est appliqué successivement selon chacune des directions principales de l'échantillon (FIG.3.4). Une perturbation thermique selon l'axe x conduira par exemple à identifier les propriétés dans cette direction. Il est donc ici nécessaire de connaître à priori les directions principales du composite.

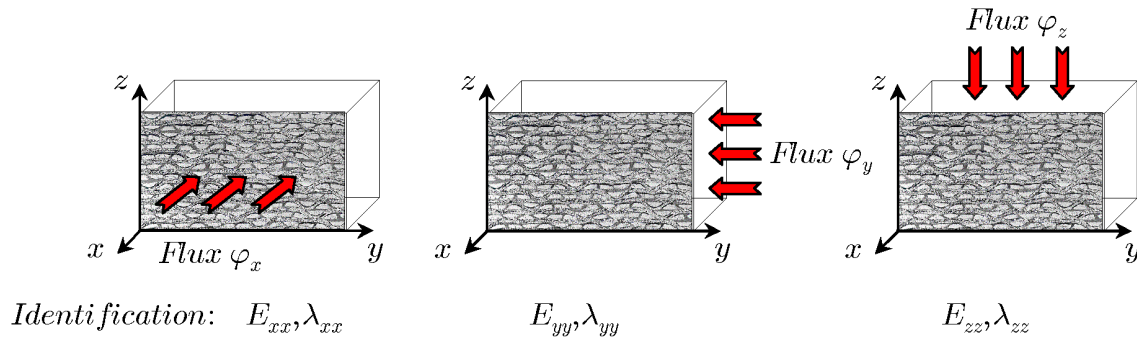


FIG. 3.4 – Schéma des trois expériences à réaliser pour la caractérisation complète d'un composite.

### 3.3 Applications à température ambiante

Avant de procéder à la caractérisation thermique de milieux solides à haut flux, il est raisonnable d'entreprendre une première campagne de mesures à température ambiante. Cette étape est essentielle à plus d'un titre car elle conduit à valider notre méthode en s'affranchissant des difficultés liées aux travaux en température. Son application sur une sélection de matériaux répondant aux critères fixés par l'étude permet de souligner en outre les précautions opératoires à prendre pour envisager sereinement l'expérience en température.

#### 3.3.1 Matériaux étudiés

Différents types de milieux isotropes et orthotropes sont testés, ceux-ci sont présentés dans le tableau 3.4. Il s'agit pour l'ensemble, de matériaux pouvant résister à un niveau de température soutenu et dont la conductivité thermique s'étale sur une large plage<sup>7</sup>.

La stratégie de validation adoptée, prévoit la comparaison des résultats de la mesure de conductivité aux données fournisseurs quand celles-ci sont connues avec précision. En ce qui concerne la préforme, une confrontation avec une conductivité déterminée indirectement à partir de la technique combinée de diffusivité flash/DSC est proposée.

TAB. 3.4 – Matrice des matériaux étudiés à température ambiante.

Nature du matériau		Désignation	Fabricant
Isotrope	Faiblement conducteur ( $1 \leq \lambda \leq 10 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ )	Mullite Zircone Alumine	Céraqitaine St Gobain (CREE) St Gobain (CREE)
	Conducteur ( $\lambda \geq 100 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ )	Graphite polycristallin	Poco
Orthotrope	Isolant ( $\lambda \leq 1 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ )	Préforme fibreuse Aiguitex	Safran (SPS)

---

<sup>7</sup>L'étude d'une préforme fibreuse est ici réalisée en vertu de ses propriétés isolantes et anisotropes. Nous pouvons envisager sa caractérisation à température ambiante en considérant que le transfert de chaleur s'effectue en majeure partie par conduction, ce qui n'est pas le cas en température.

### 3.3.2 Choix de l'isolant thermique et méthode pour la détermination de son effusivité

Le matériau isolant pressenti pour réaliser des mesures jusqu'à un niveau de température intermédiaire est le « skamol<sup>8</sup> ». Le modèle d'estimation établi précédemment nécessite de connaître précisément son effusivité thermique  $E_i$ . Pour ce faire, la méthode du plan chaud avec deux échantillons disposés symétriquement de part et d'autre de l'élément chauffant est retenue.

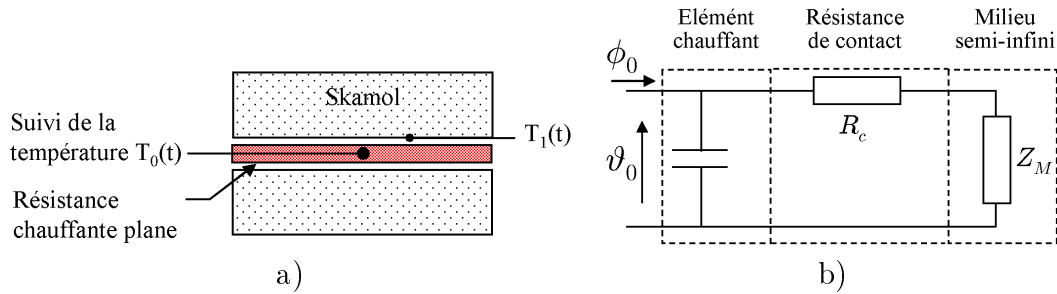


FIG. 3.5 – a) Schéma de principe du dispositif, b) Représentation quadripolaire associée.

#### Modèle direct et identification

L'effusivité thermique est identifiée aux temps courts par un modèle complet tenant compte de l'inertie de la sonde et des résistances d'interface. Ainsi, en utilisant les notations de la figure 3.5, le bilan thermique quadripolaire considérant l'échantillon isolant comme un milieu semi-infini s'écrit :

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \frac{1}{2p}\phi_0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ \frac{1}{2}mc_p p & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & Rc \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_1 \\ E_i S \sqrt{p}\phi_1 \end{bmatrix} \quad (3.12)$$

Avec :

- $\theta_i$  Transformée de Laplace de la différence  $T_i(t) - T_i(t=0)$
- $\phi_i$  Transformée de Laplace de la différence  $\varphi_i(t) - \varphi_i(t=0)$
- $Rc$  Résistance de contact à l'interface résistance chauffante/échantillon
- $m$  Masse du système « capteur de température + résistance chauffante »
- $c_p$  Capacité calorifique du système « capteur de température + résistance chauffante »
- $E_i$  Effusivité thermique de l'isolant
- $p$  Variable de Laplace
- $S$  Surface de la résistance chauffante
- $\varphi_0$  Puissance électrique dissipée dans la résistance chauffante

<sup>8</sup>Silicate de calcium, température maximale d'utilisation 1250°C

La résolution du système permet alors d'exprimer la température  $\theta_0$  dans l'espace de Laplace en fonction des paramètres opératoires (relation 3.13). Le retour dans l'espace réel s'effectue numériquement grâce à l'algorithme de Stehfest (relation 3.9).

$$\theta_0(p) = \frac{1}{2} \frac{\varphi_0}{p} \frac{1 + RcE_iS\sqrt{p}}{\frac{1}{2}mc_p p + \left[\frac{1}{2}mc_p Rc + 1\right] E_iS\sqrt{p}} \quad (3.13)$$

L'identification de l'effusivité  $E_i$  est réalisée en minimisant les écarts quadratiques entre la courbe expérimentale et la courbe théorique par la méthode de Newton. La validité de l'hypothèse du milieu semi-infini est vérifiée par le tracé des deux températures en fonction de la racine du temps. Le comportement asymptotique aux temps longs du modèle semi-infini étant linéaire, nous considérons que l'hypothèse n'est plus valide lorsque les températures mesurée et calculée se séparent.

### 3.3.3 Résultats expérimentaux - validation du modèle

L'ensemble des résultats présentés dans cette partie a été obtenu avec les instruments de mesure suivants :

- L'excitation thermique des échantillons est assurée par un plan chauffant en carbone, développé pour résister aux hautes températures (cf chapitre 4). Il est isolé électriquement par un revêtement grossier de nitrure de bore pulvérisé, sa résistance électrique est de  $15,53 \Omega$  pour une surface d'échange de  $50 \times 50 \text{ mm}^2$ ,
- Les températures sont mesurées par des thermocouples de type T à contact séparé (fils de cuivre et de constantan de diamètre  $7/100 \text{ mm}$ ) placés au centre de la sonde et de l'échantillon,
- Une centrale d'acquisition (National Instruments, NI-USB 9211A) permet d'enregistrer les tensions à une fréquence maximale de  $6 \text{ Hz}$ . La résolution est de  $1 \mu\text{V}$  ce qui correspond à  $0,025^\circ\text{C}$ .

#### Effusivité thermique de l'isolant

Les épaisseurs des plaques de skamol dont nous disposons sont de  $25 \text{ mm}$ . La densité du flux de chaleur dissipée par l'élément chauffant est constante et égale à  $100 \text{ W.m}^{-2}$ . Dans ces conditions, l'estimation est possible sur l'intervalle de temps  $0 - 80$  secondes (cf FIG.3.6). L'expérience est conduite à plusieurs reprises attestant la reproductibilité et la répétabilité des mesures. L'effusivité moyenne mesurée est de  $176 \text{ J.m}^{-2}.K^{-1}.s^{1/2}$  (TAB.3.5).

TAB. 3.5 – Détermination de l'effusivité thermique du skamol - tableau de valeurs.

Température °C	Densité de flux $\text{W.m}^{-2}$	Intervalle d'estimation		Effusivité $\text{J.m}^{-2}.K^{-1}.s^{-1/2}$	Ecart type %
		$t_0(s)$	$t_f(s)$		
25	100	0	80	176	1,7



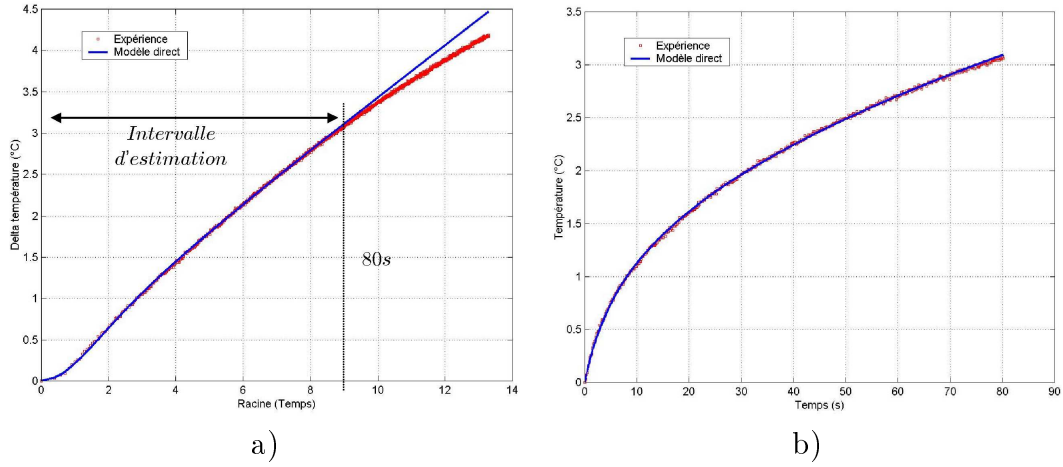


FIG. 3.6 – Détermination de l’effusivité thermique du skamol - a) choix de l’intervalle d’estimation et b) concordance des thermogrammes expérimental et théorique après minimisation

### Caractérisation des matériaux isotropes

Cinq expériences ont été réalisées pour chacun des matériaux présentés précédemment par la méthode du plan chaud avec mesure de deux températures. Les épaisseurs des échantillons, la densité du flux de chaleur dissipée par l’élément chauffant ainsi que l’intervalle d’estimation des grandeurs identifiées ont été ajustés selon une étude de sensibilité similaire à celle menée § 3.2.3 pour chacun d’entre eux. Ces données expérimentales sont réunies dans le tableau 3.6. Les dimensions du côté des échantillons en contact avec le plan chauffant sont fixées à  $50 \times 50 \text{ mm}^2$ .

TAB. 3.6 – Données expérimentales pour la caractérisation des matériaux isotropes.

Echantillon	Épaisseur <i>mm</i>	Densité de flux $W.m^{-2}$	Intervalle d’estimation	
			face avant	face arrière
Mullite	25	650	0-50 s	20-180 s
Zircone	30	1000	0-50 s	20-180 s
Alumine	30	1000	0-50 s	20-180 s
Graphite	70	1250	0-30 s	20-160 s

Les résultats obtenus et les écarts-type associés aux mesures sont rassemblés dans le tableau 3.7. Les diffusivités thermiques et capacités thermiques volumiques sont calculées à partir des valeurs d’effusivité et de conductivité thermique mesurées. A titre d’exemple, la figure 3.7 présente les thermogrammes expérimentaux relatifs aux échantillons alumine et graphite. Les solutions analytiques calculées par le modèle complet à partir des grandeurs identifiées sont superposées. Une bonne concordance des courbes est constatée dans les deux cas.

TAB. 3.7 – Résultats des mesures sur les matériaux isotropes (unité SI).

Echantillon	Estimation face avant		Estimation face arrière		Grandeurs déduites	
	E	Ecart type	$\lambda$	Ecart type	$\rho cp$	a
Mullite	<b>2919</b>	3,03 %	<b>3,58</b>	1,96 %	$2,38.10^6$	$1,50.10^{-6}$
Zircone	<b>3778</b>	2,26 %	<b>4,90</b>	2,01 %	$2,91.10^6$	$1,69.10^{-6}$
Alumine	<b>4507</b>	1,83 %	<b>5,23</b>	1,27 %	$3,89.10^6$	$1,35.10^{-6}$
Graphite	<b>12637</b>	2,00 %	<b>102,8</b>	1,24 %	$1,55.10^6$	$6,62.10^{-6}$

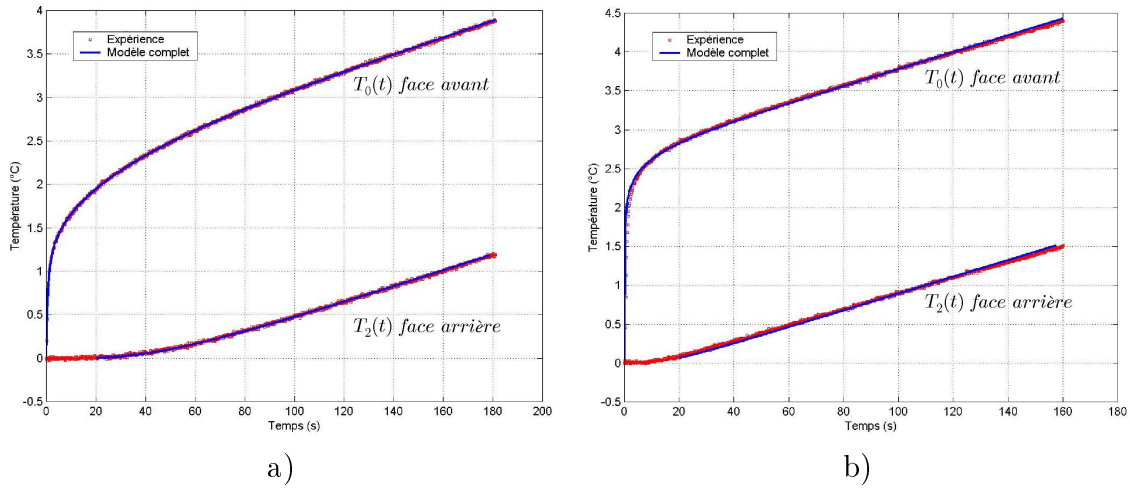


FIG. 3.7 – Thermogrammes expérimentaux et théoriques après minimisation en face avant et face arrière - a) cas de l'alumine et b) cas du graphite.

### Caractérisation d'un matériau orthotrope

La préforme fibreuse étudiée est élaborée selon le procédé d'aiguilletage Novoltext. Son architecture est 3D. Elle est composée d'un empilement de plis tissés de fibres de carbone selon une structure satin 8-3 et de feutres, en carbone également, soumis à l'aiguilletage. Le taux de fibres total est de 30 % (5 % dans le sens de l'aiguilletage). Pour ce matériau, les directions privilégiées vis-à-vis du transfert thermique sont les directions parallèle et transversale aux plans des plis. Seules deux expériences sont donc nécessaires pour une caractérisation complète.

Les échantillons dont nous disposons proviennent d'une préforme de plusieurs centimètres de diamètres. Dans la première expérience, l'apport du flux s'effectue selon la direction transverse aux plis (sens T). Dans la seconde expérience, l'apport du flux s'effectue selon la direction parallèle aux plis (sens L). Un schéma des deux

expériences est représenté ci-dessous.

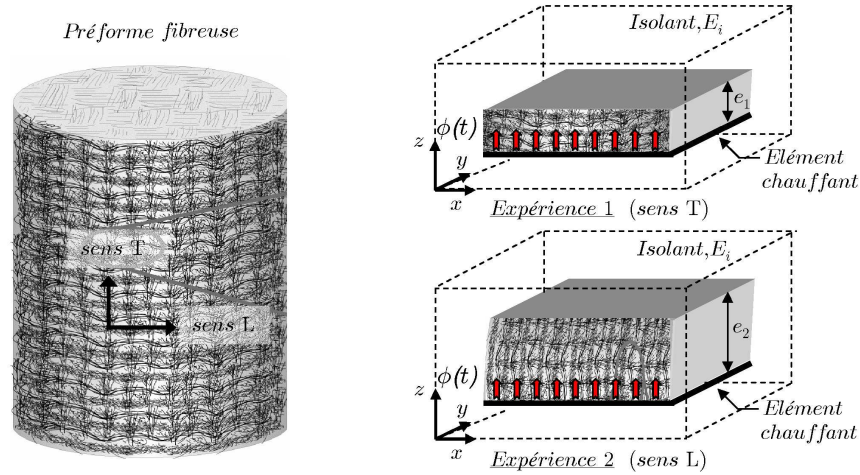


FIG. 3.8 – Préforme fibreuse et expériences réalisées.

Les données expérimentales et les résultats des mesures réalisées sur ce matériau sont rassemblés respectivement dans les tableaux 3.8 et 3.9. Les thermogrammes obtenus étant très proches de ceux de la figure 3.7, il n'a pas été jugé utile de les présenter.

TAB. 3.8 – Données expérimentales pour la caractérisation des matériaux orthotropes.

Echantillon		Epaisseur <i>mm</i>	Densité de flux $W.m^{-2}$	Intervalle d'estimation	
				face avant	face arrière
Préforme	Sens T	30	500	0-30 s	20-100 s
	Sens L	10	350	0-30 s	20-100 s

TAB. 3.9 – Résultats des mesures sur les matériaux orthotropes (unité SI).

Echantillon		Estimation face avant		Estimation face arrière		Grandeurs déduites	
		E	Ecart type	$\lambda$	Ecart type	$\rho_{cp}$	a
Préforme	Sens T	<b>419</b>	4,61 %	<b>0,284</b>	6,53 %	$0,62 \cdot 10^6$	$4,58 \cdot 10^{-7}$
	Sens L	<b>624</b>	1,94 %	<b>0,612</b>	2,63 %	$0,64 \cdot 10^6$	$9,62 \cdot 10^{-7}$

### Validation de la méthode et intervalle de confiance

Pour l'ensemble des matériaux étudiés, les conductivités thermiques sont ici comparées à une valeur de référence. Il s'agit de données fournisseurs pour les céramiques et le graphite. Les mesures obtenues pour la préforme sont confrontées aux valeurs issues d'une caractérisation antérieure menée par l'équipe de D. Demange du laboratoire de l'ONERA Palaiseau.

Ci dessous, le tableau 3.10 présente les résultats en soulignant notamment la méthode employée pour la détermination de la conductivité dite de référence, les écarts relatifs entre les deux valeurs sont également précisés.

TAB. 3.10 – Comparaison des conductivités mesurées avec les valeurs de référence (unités SI).

Matériau	Conductivité mesurée	Conductivité de référence			Ecart mes/réf.	
		Valeur	Méthode	Source		
Mullite	3,58	3,53	Plan chaud	[99]	1,39 %	
Zircone	4,90	4,77	Fil Chaud	[100]	2,65 %	
Alumine	5,23	5,50	Fil Chaud	[100]	4,90 %	
Graphite	102,9	104	Méth. flash + DSC	[101]	1,06 %	
Préforme	Sens T	0,284	0,38	Méth. flash + DSC	[102]	25,3 %
	Sens L	0,612	0,60			1,96 %

Une vue d'ensemble de ces résultats est également donnée par le graphique de la figure 3.9. Celui-ci rapporte la totalité des conductivités mesurées en fonction des valeurs prises comme référence. Une marge d'erreur de  $\pm 10\%$  y est indiquée en pointillé. Excepté pour l'un d'entre eux, les résultats des différentes mesures expérimentales se situent à l'intérieur de la zone des  $10\%$  ce qui est tout à fait acceptable.

L'écart relatif le plus conséquent concernent la conductivité thermique transverse de la préforme (25,3 %). Cette entorse aux résultats nous donne l'occasion d'attirer ici l'attention sur un point essentiel de la méthode : l'effusivité de la préforme étant du même ordre de grandeur que celle du skamol, le contraste thermique entre l'isolant et l'échantillon n'est pas mis à profit dans cette situation. La précision de mesure se trouve alors très réduite ; une erreur, aussi minime soit-elle, sur la valeur d'effusivité de l'isolant  $E_i$  a pour conséquence d'entraîner rapidement un écart important sur le résultat. Mais rappelons que le dispositif est avant tout conçu pour

caractériser des matériaux à tendance conductrice ( $1 < \lambda < 100 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ).

Pour ce cas de figure et à l'inverse de ce qui est préconisé dans la méthode proposée, le confinement de l'échantillon dans un bloc conducteur serait plus judicieux pour maîtriser au mieux les conditions aux frontières. Cette opération nécessiterait toutefois l'écriture d'un nouveau modèle d'identification adapté à l'expérience qui nous écarterait des objectifs de l'étude.

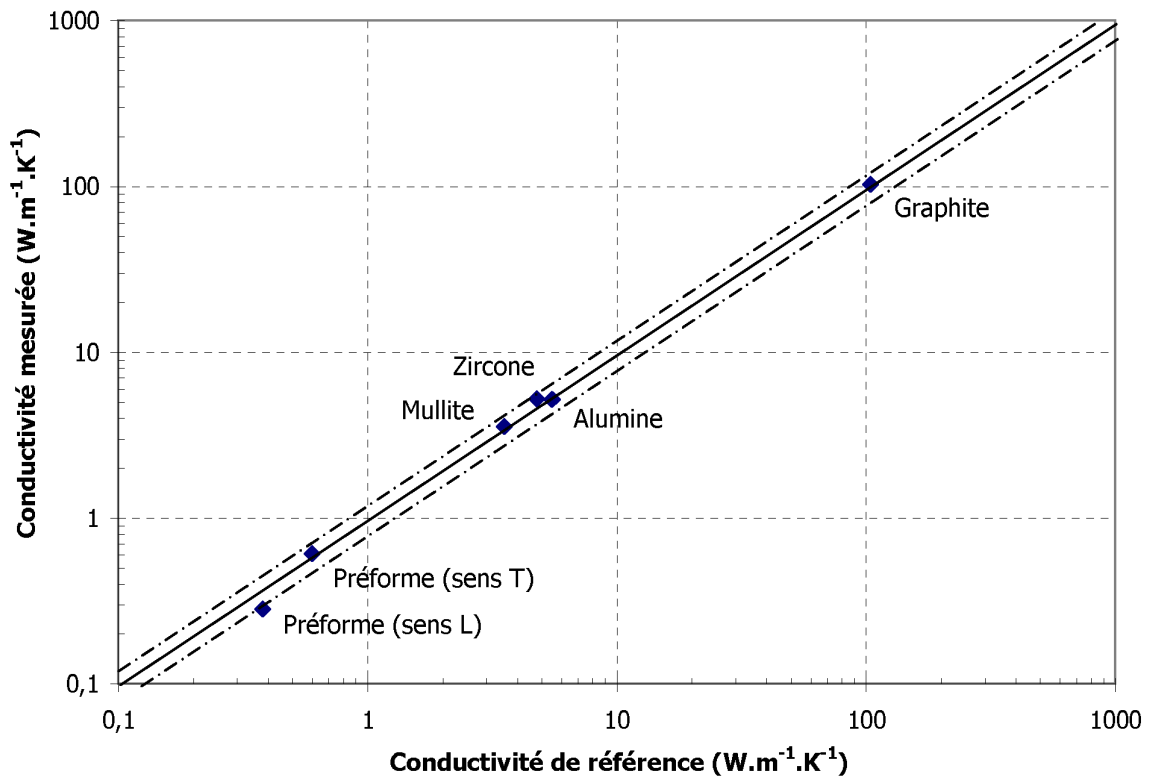


FIG. 3.9 – Représentation graphique des conductivités mesurées en comparaison aux valeurs de référence.

### 3.4 Conclusion du chapitre

Ce chapitre démontre qu'il est possible d'identifier simultanément, l'effusivité et la conductivité thermique de milieux solides, à l'aide d'un dispositif de mesure par contact à la fois souple et robuste dans son utilisation. L'adaptation de la méthode du plan chaud classique où le suivi de la température s'effectue sur les faces avant et arrière d'un échantillon unique associé à un isolant thermique est à l'origine de la méthode proposée.

Un des points forts de cette méthode tient au fait qu'elle soit applicable de manière simple sur les matériaux orthotropes dont les propriétés dépendent fortement de la direction. Malgré des conditions d'application difficiles, compte tenu des caractéristiques thermiques des échantillons étudiés, les mesures préliminaires, réalisées à température ambiante, ont permis d'identifier des propriétés transversale et longitudinale.

L'utilisation d'un modèle quadripolaire complet, permettant d'exploiter la totalité des points des thermogrammes, évite le choix souvent délicat de la bonne fenêtre d'exploitation à la base des modèles simplifiés. L'étude de sensibilité aux différents paramètres, systématique pour chaque échantillon et n'autorisant qu'un seul choix possible d'intervalle d'estimation pour une épaisseur et une densité de flux donnée, procure un caractère rigoureux à cette méthode. Enfin, la prise en compte des résistances thermiques de contact ainsi que de l'inertie de la sonde exerce sans aucun doute ici, une influence significative dans la précision des mesures.

A ce stade des travaux, nous disposons à présent d'un modèle analytique permettant de simuler différentes situations de mesure. Celui-ci a été testé puis validé expérimentalement à température ambiante pour des échantillons isotropes et anisotropes dont les conductivités thermiques se situent dans la plage proche de 1 à 100  $W.m^{-1}.K^{-1}$ . Dans une démarche cohérente, la prochaine étape va maintenant consister à concevoir les instruments dédiés à la mesure en température.



# Chapitre 4

## Instrument de mesure pour la caractérisation thermique en température

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction sur la conception . . . . .</b>	<b>121</b>
<b>4.2</b>	<b>Isolation électrique . . . . .</b>	<b>122</b>
4.2.1	Voies de synthèse du nitrure de bore hexagonal . . . . .	122
4.2.2	Mise en place d'installations CVD . . . . .	124
4.2.3	Elaboration de revêtements isolants . . . . .	126
<b>4.3</b>	<b>Développement de nouveaux instruments de mesures thermiques et applications . . . . .</b>	<b>129</b>
4.3.1	Capteur pour la mesure de température par contact . . . . .	129
4.3.2	Sonde d'excitation thermique par contact . . . . .	147
<b>4.4</b>	<b>Conclusion du chapitre . . . . .</b>	<b>163</b>

---





Avec le concours de la synthèse bibliographique menée sur les techniques de caractérisation thermique, le chapitre précédent a permis la mise en place d'une nouvelle méthode de mesure par contact adaptée aux exigences des hautes températures. Grâce à une campagne d'essais, réalisée sur une large gamme d'échantillons, cette dernière a été validée à température ambiante.

La volonté à présent d'effectuer des mesures à haut flux nécessite de concevoir des instruments appropriés. En accord avec les considérations énoncées au chapitre 3, cette partie se consacre à l'élaboration des deux éléments suivants :

- un moyen de mesure permettant une estimation précise de la température au sein de milieux hétérogènes,
- une source de chaleur, stable, fiable et puissante afin de pouvoir exciter thermiquement les échantillons étudiés.

## 4.1 Introduction sur la conception

Deux raisons majeures sont à l'origine de la conception des instruments proposés pour la caractérisation thermique à haute température. A l'évidence, la première d'entre elles concerne l'inexistence dans le commerce d'éléments chauffants voués à un emploi au delà de 700°C. La seconde concerne la volonté d'intégrer au mieux le caractère hétérogène des composites lors de l'expérience de caractérisation en réalisant une mesure linéique de la température. Ces motivations, nous ont ainsi conduits à utiliser le savoir-faire du LCTS pour concevoir nos outils. En effet, pour être compatible avec la plage de températures visées (1000-1500°C), sur laquelle peu de matériaux prétendent résister, il est judicieux d'utiliser des matériaux de même nature que celle des échantillons à caractériser.

C'est en partant de ce constat que l'idée de recourir aux fibres de carbone pour accéder à la température via une mesure de leur résistance électrique s'est révélée particulièrement intéressante. Les niveaux de température escomptés sont en théorie égaux à la température limite d'utilisation de la fibre (1800 à 2500°C selon le type). L'étendue géométrique des fibres contrastant avec leur faible épaisseur permet en outre d'atteindre un niveau de précision élevé (cf chapitre 3, TAB. 3.1).

De même, l'utilisation d'une feuille de graphite souple comme élément chauffant s'est montrée tout à fait réaliste. La tenue de ce matériau sur une large plage de température (-196°C à plus de 2500°C), son inertie chimique vis-à-vis d'autres milieux en atmosphère contrôlée ainsi que sa résistivité électrique moyenne ( $\rho_{lec} = 10^{-3} \Omega.cm$ ) en font un excellent candidat pour cette application.

Comme nous l'avons fait remarquer dans la première partie du manuscrit, la principale difficulté à surmonter pour concevoir ces instruments repose assurément sur leur isolation électrique. Il s'agit en effet de proposer puis d'élaborer un revêtement isolant, capable de maintenir sa fonction et son intégrité sous l'effet de la température, sans que celui-ci ne vienne perturber la mesure par une trop grande résistance thermique. Cette tâche peut paraître a priori délicate car les matériaux isolants électriques sont souvent également isolants thermiques. Fort heureusement, quelques uns d'entre eux font exception à la règle.

## 4.2 Isolation électrique

Le nitrure de bore sous sa forme cristalline hexagonale (*h-BN*), utilisé comme élément d'interphase fibre/matrice dans la constitution des composites thermostructuraux, en vertu de ses propriétés protectrices face à l'oxydation, a été proposé pour réaliser cette opération. Cette céramique est en effet la seule à notre connaissance qui présente une aptitude à conduire la chaleur, tout en étant isolant électrique dans le domaine de température pressenti (cf caractéristiques données tableau 4.1). Sa structure en feuillets d'hexagones (voir FIG. 4.1), semblable à la structure graphitique, où s'alternent atomes de bore et d'azote, contribue de plus à la bonne compatibilité chimique et physique avec le carbone, envisagé ici comme substrat (fibre et plan).

### 4.2.1 Voies de synthèse du nitrure de bore hexagonal

Il existe trois voies de synthèse du nitrure de bore hexagonal qui se distinguent par la nature de la céramique attendue :

(1) - Le nitrure de bore est un matériau qui peut être obtenu facilement sous forme de poudre par pyrolyse de réactifs bon marché tels l'anhydride borique, l'ammoniac ou l'urée. Le frittage de cette poudre permet sous certaines conditions de température l'obtention de *h-BN*. Cette technique est réservée à la réalisation d'objets massifs et n'est donc pas envisageable dans notre étude.

(2) - Une seconde voie de synthèse fait appel à des précurseurs polymériques liquides contenant du bore et de l'azote. La pyrolyse de ces derniers permet la réalisation de produits plus spécifiques comme des revêtements, des mousses, des matrices ou des fibres. L'une des approches largement explorées par des équipes françaises consiste à pyrolyser des boranes trisubstitués par des groupements azotés. Des composés tels que le tris(méthylamino)borane [103] et le tris(isopropylamino)borane [104] conduisent ainsi à l'obtention de *h-BN* sous forme de films minces avec un taux de résidu après thermolyse tout à fait acceptable.

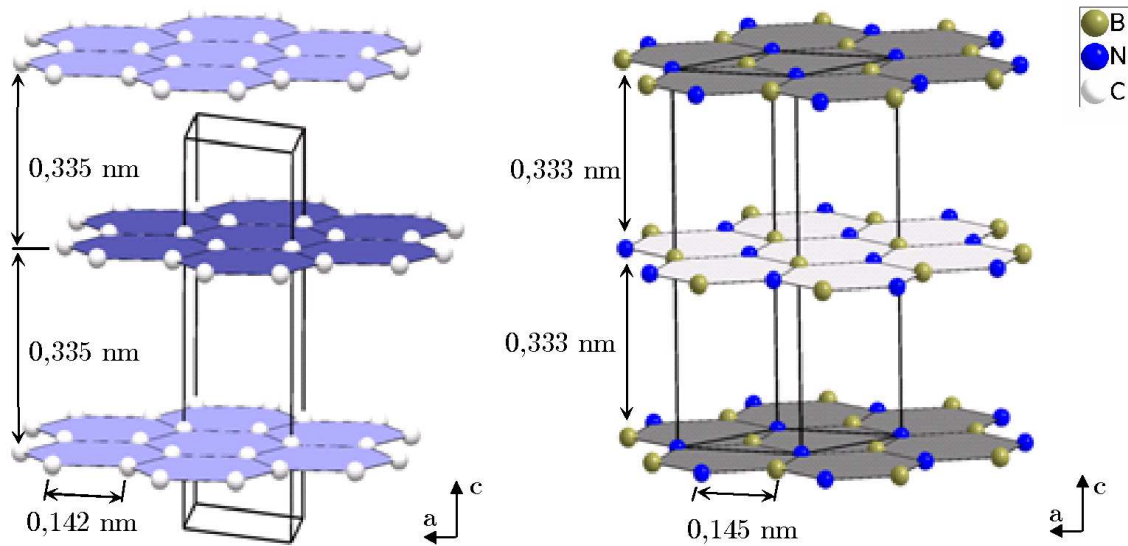


FIG. 4.1 – Structure cristalline en feuillets du graphite et du nitrure de bore hexagonal.

**Propriétés physiques**

Température maximale d'utilisation sous air	950°C
Température maximale d'utilisation sous atmosphère inerte	2200°C

**Propriétés électriques**

Résistivité électrique à 1000°C : - selon l'axe c	$3 \cdot 10^9 \Omega \cdot m$
- selon l'axe a	$3 \cdot 10^7 \Omega \cdot m$
Résistivité électrique à 1500°C : - selon l'axe c	$3 \cdot 10^7 \Omega \cdot m$
- selon l'axe a	$3 \cdot 10^5 \Omega \cdot m$

**Propriétés thermiques**

Conductivité thermique moyenne dans l'intervalle 20-800°C selon l'axe a	$62,8 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
Conductivité thermique à 25°C selon l'axe c	$1,47 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
Conductivité thermique à 800°C selon l'axe c	$2,93 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
Coefficient de dilatation thermique dans l'intervalle 25-2000°C	$2,3 \cdot 10^{-6} K^{-1}$

TAB. 4.1 – Propriétés remarquables du nitrure de bore hexagonal [105].

(3) - Enfin, une dernière technique consiste à déposer le *h*-BN par dépôt chimique en phase gazeuse (CVD) à partir de précurseurs moléculaires gazeux ou volatils. Les nombreuses études sur ce procédé ont exploité un large éventail de précurseurs. Les plus courants sont  $BCl_3-NH_3$  [106, 107] permettant d'atteindre des vitesses de dépôt élevées dès 800°C et  $BF_3-NH_3$  [108, 109] et conduisant à un nitrure de bore hexagonal très bien organisé.

A travers les travaux de recherche portant sur l'amélioration des propriétés interfaciales des composites SiC/SiC, le LCTS a acquis une solide expérience sur le procédé de dépôt de nitrure de bore par CVD. Bien que l'enrobage de fibres ou de substrats plans de carbone de h-BN par voie de conversion polymérique ne semble pas être contre indiqué ici, il a été décidé de réaliser l'élaboration par voie gazeuse. Ce procédé semble également mieux adapté pour maîtriser les épaisseurs de revêtement.

**Choix du système précurseur** Une alternative à l'emploi de composés halogénés est donnée par l'utilisation de la borazine  $B_3N_3H_6$  et de ses dérivés [110] dont un des intérêts principaux est la réalisation de dépôts à plus faible température. Le précurseur de ce type donnant les résultats les plus remarquables selon la littérature [111, 112] (couche pure et homogène en épaisseur) est le tris(diméthyl)aminoborane (TDMAB) de formule brute  $B[N(CH_3)_2]_3$ . Généralement, il est employé avec l'ammoniac de manière à accroître la source en azote et pour favoriser le départ de son groupement amine [113]. Le dihydrogène est utilisé comme gaz vecteur.

Nous voyons deux avantages à choisir ce système précurseur pour isoler nos instruments de mesure :

- il est novateur pour le LCTS et doit être mis en concurrence avec les systèmes classiquement utilisés pour la réalisation d'interphases protectrices des composites,
- c'est un système « propre » et non toxique. L'absence de composés halogénés évite tout risque de dégradation chimique des fibres traitées [114], les appareillages sont préservés.

## 4.2.2 Mise en place d'installations CVD

Le dimensionnement puis la conception de deux nouvelles installations CVD, permettant l'obtention de revêtements de nitrure de bore sur les substrats fibres et plans, ont été réalisés dans le cadre de ce travail. L'originalité des appareillages développés repose sur leur mode de chauffage. Celui-ci est apporté par effet joule (ou dissipation d'énergie) directement à travers les substrats permettant l'emploi de mors froids. Le carbone étant conducteur électrique, la température peut être

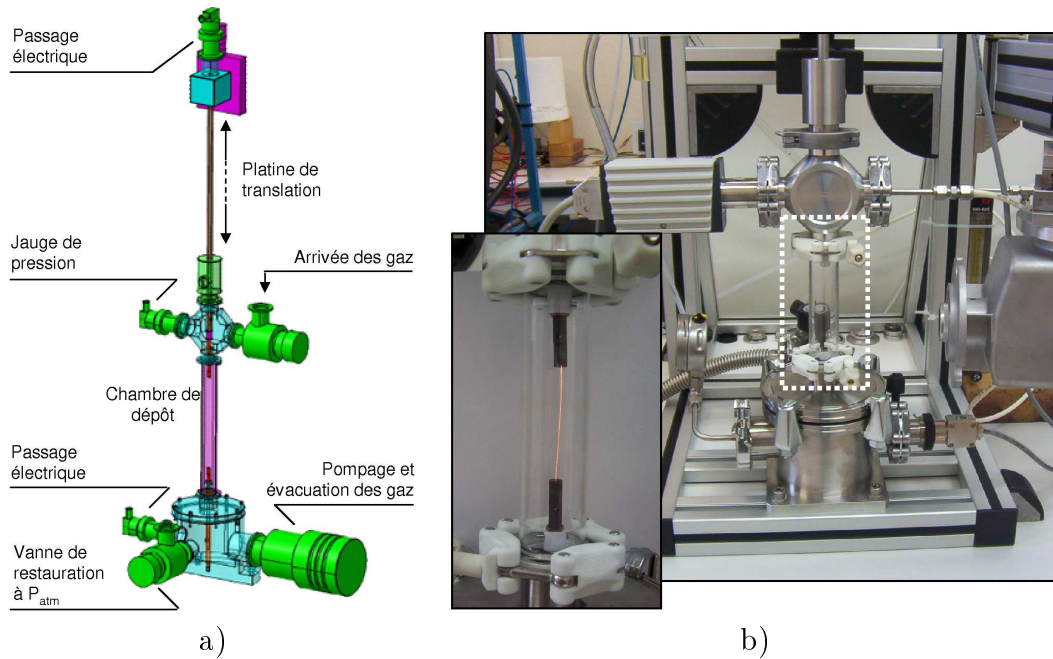


FIG. 4.2 – Dispositif de dépôt CVD du nitrure de bore hexagonal sur monofilament  
a) représentation schématique, b) photographie du dispositif.

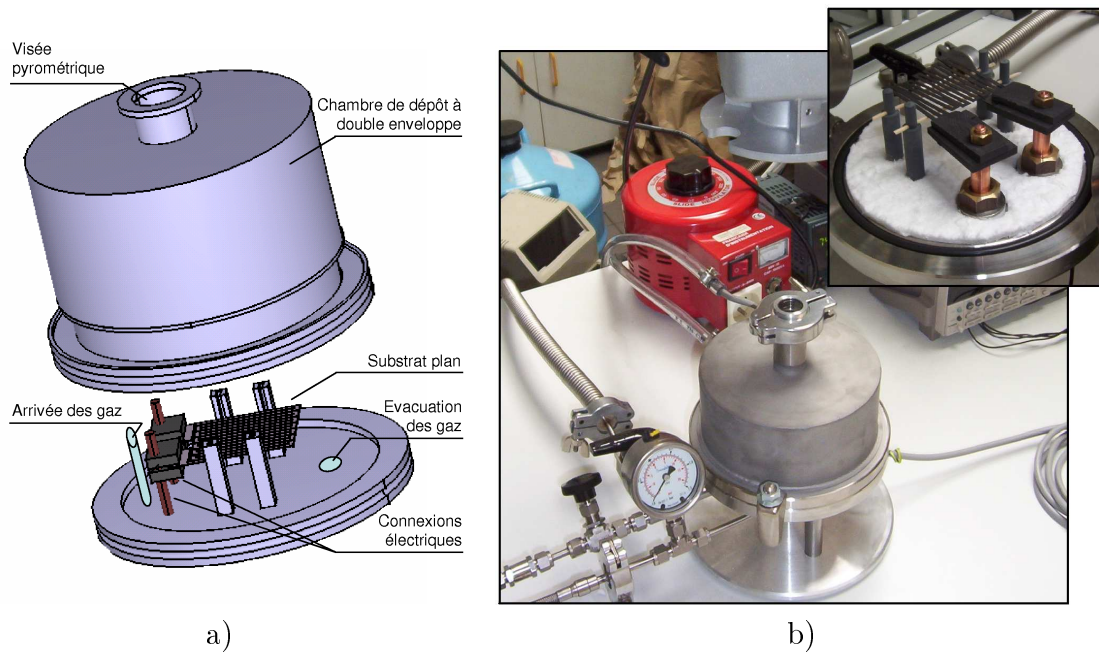


FIG. 4.3 – Dispositif de dépôt CVD du nitrure de bore hexagonal sur substrat plan  
a) représentation schématique, b) photographie du dispositif.

maintenue homogène sur la totalité de la fibre traitée, comme cela a déjà été démontré dans des travaux antérieurs [4, 9]. Il en est de même pour les substrats plans; l'homogénéité de température a été vérifiée expérimentalement, pour la géométrie testée, par thermographie IR.

En phase d'utilisation, le suivi de la température est effectué à l'aide d'un pyromètre optique bi-chromatique, autorisant la mesure d'objets de petite taille à travers une paroi de verre borosilicaté. La distribution en gaz se fait par l'intermédiaire d'un réseau à pression atmosphérique en acier inoxydable, l'alimentation électrique est dimensionnée pour chacun des deux montages en fonction de la résistance du substrat et du niveau de température souhaité<sup>1</sup>. Enfin, afin d'établir un écoulement laminaire de la phase gazeuse, la chambre de dépôts est tubulaire cylindrique.

Ces installations ont été conçues par C.A.O., les figures 4.2 et 4.3 donnent une représentation schématique légendée succincte ainsi que les photographies des deux dispositifs. Nous ne commenterons pas plus ces derniers car ils vont être décrits de manière très détaillée dans les paragraphes qui suivent (§4.3.1 et §4.3.2).

### 4.2.3 Elaboration de revêtements isolants

La validation du procédé de dépôt de nitrure de bore hexagonal ainsi que l'optimisation des conditions opératoires ont été réalisées sur monofilaments.

**Fibre de carbone étudiée** La fibre de carbone étudiée est une fibre ex-brai produite par Nippon Graphite Fiber. Elle a été choisie à la fois pour ses bonnes propriétés mécaniques en température mais également en vertu de la forte sensibilité de sa résistivité électrique à la température (cf TAB. 4.2 et FIG. 4.4b).

		Fibre brute	Fibre THT 2200°C	
		T <sub>amb.</sub>	T <sub>amb.</sub>	2000°C
Module d'Young	(GPa)	54	53	35
Contrainte à rupture	(MPa)	1180	980	630
Résistivité électrique	( $\mu\Omega.m$ )	24,8	23,8	12,5
Conductivité thermique	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	4,1	4,2	30,0

TAB. 4.2 – Propriétés remarquables de la fibre XN05 [4, 9]

Elle se présente sous la forme d'un fil continu plat de 3000 fibres ensimées sans torsion. L'ensimage est éliminé par un traitement à 400°C pendant quelques minutes. Cette fibre est désignée dans notre étude par l'appellation XN05.

---

<sup>1</sup>(600V - 50mA) pour chauffer un monofilament jusqu'à 2000°C sous vide primaire, (220V - 5A) pour chauffer un substrat plan jusqu'à 2000°C sous vide primaire.

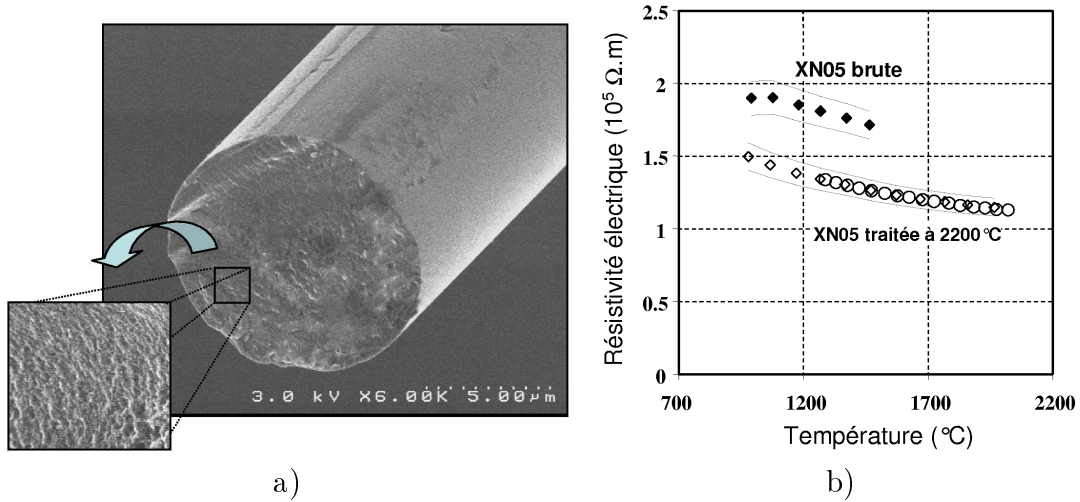


FIG. 4.4 – a) Section transverse de la fibre XN05 après traitement à 2200°C, b) résistivité électrique de la fibre XN05 [9].

Lors de son élaboration, la carbonisation est effectuée aux alentours de 1800°C pendant quelques minutes. Afin de prévenir toute modification de structure lors de son utilisation à haute température, un traitement thermique de stabilisation de 2h30 à 2200°C a été réalisé. L'observation en microscopie électronique à balayage des fibres traitées montre des sections parfaitement circulaires de diamètre environ égal à 10  $\mu m$  (cf FIG. 4.4a). Leur aspect ne semble pas avoir été modifié par le traitement thermique, signe que cette fibre n'est pas graphitisable. Globalement, sa texture reste isotrope dans le sens transverse.

**Dépôts CVD du nitrure de bore hexagonal** Les fibres unitaires, solitaires d'un dispositif de préhension, sont disposées verticalement dans la chambre de dépôt puis portées en température. Les conditions expérimentées sont celles évoquées dans la littérature [112]. Le précurseur commercial TDMAH, liquide à température ambiante (tension de vapeur 780 Pa), est entraîné par le dihydrogène dans l'enceinte réactionnelle à travers un bulleur maintenu à 35°C avec un débit de 15 ml/min TPN. L'ammoniac est ajouté dans le milieu avec un débit de 100 ml/min TPN. La pression totale est maintenue constante à 30kPa tout au long de l'opération.

Dans une première approche, l'effet de la température sur la cinétique de dépôt a été étudié. L'objectif est d'obtenir rapidement un revêtement pur et homogène de nitrure de bore d'épaisseur suffisamment importante pour isoler électriquement les fibres. Trois niveaux de température ont été explorés : 1100°C, 1300°C et 1500°C pour une durée fixée à 40 minutes. Les caractérisations ont été réalisées ici par de simples observations en microscopie électronique à balayage.



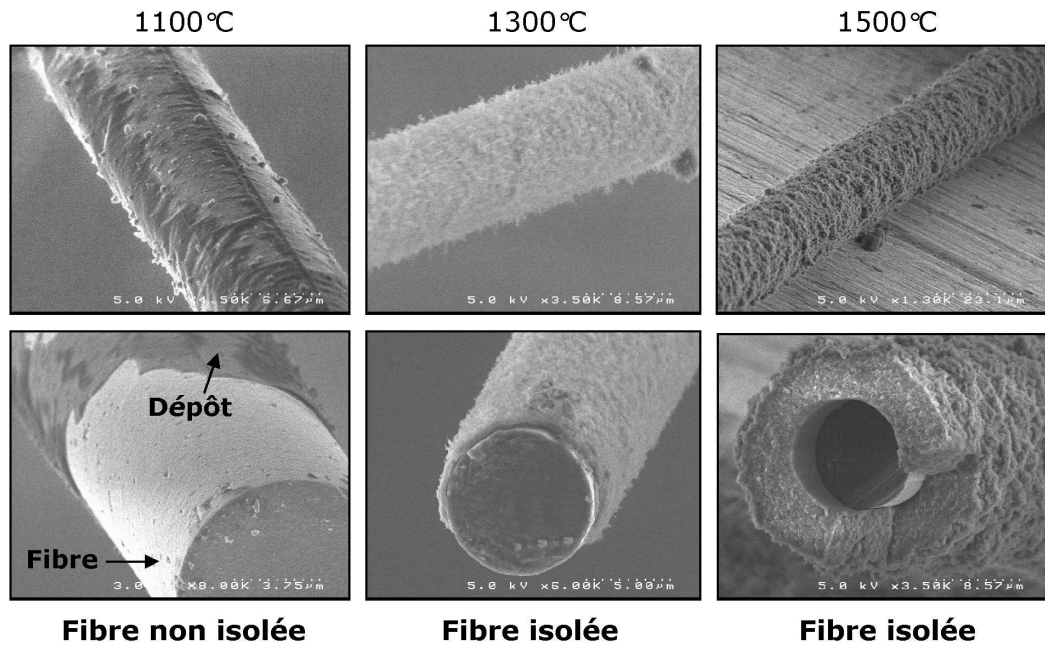


FIG. 4.5 – Clichés MEB des fibres revêtues de  $h - BN$  élaboré dans les conditions décrites pour les trois niveaux de température explorés.

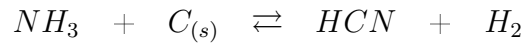
Cet examen qualitatif a mis en évidence la présence d'un dépôt pour chacun des essais (FIG. 4.5). Il nous a permis d'estimer les épaisseurs déposées et d'apprécier grossièrement la texture des couches. Ainsi, il apparaît que le dépôt réalisé à 1100°C est très fin (de l'ordre de 0,1 à 0,3  $\mu\text{m}$ ), marqué par des zones plus ou moins contrastées. Les tests électriques menés pour vérifier le caractère isolant de la fibre recouverte sont défavorables dans ce cas. Cela était prévisible au vue des discontinuités indéniables que présente la couche.

En revanche, les dépôts réalisés à plus hautes températures sont parfaitement homogènes et épousent remarquablement la surface des fibres traitées. Les épaisseurs obtenues égalent respectivement 0,7  $\mu\text{m}$  et 5  $\mu\text{m}$  pour les dépôts élaborés à 1300°C et 1500°C. Pour ces deux revêtements, aucune distribution ni orientation préférentielle des grains n'est observée, la texture est isotrope. Les tests électriques sont concluants, les dépôts élaborés dans ces conditions isolent électriquement la fibre de carbone.

Une étude approfondie sur l'organisation structurale et texturale d'un revêtement élaboré dans ces conditions à 1300°C a été conduite par microscopie électronique à transmission (MET). De même, l'homogénéité de composition chimique au sein des dépôts a été vérifiée par analyse spectrométrique d'électron Auger (SEA). Les résultats de ces travaux, dépassant le cadre de ce chapitre, ont été formalisés dans un article rédigé en anglais. Celui-ci est présenté en annexe B.

**Elaboration d'un film de carbure de silicium** Pour pallier une éventuelle interaction entre le substrat en carbone et le dépôt isolant, il peut être souhaitable dans certains cas, d'intercaler un film de carbure de silicium (*SiC*). La présence de ce revêtement intermédiaire permet en effet :

- de limiter la diffusion du carbone dans la couche de nitrure de bore. Ce phénomène irréversible, favorisé par un niveau de température élevé, conduit à dégrader les propriétés d'isolation électrique. Il est mis en évidence dans l'article fourni en annexe B,
- d'empêcher la réaction chimique entre l'ammoniac et le carbone entraînant la détérioration, voire la destruction du substrat lors du dépôt CVD selon la réaction [108, 115] :



L'élaboration de revêtements de *SiC* par voie gazeuse a ainsi été étudiée sur les installations dédiées à la synthèse de *BN* hexagonal. L'emploi d'un précurseur non toxique et non corrosif tel que le tétraméthylsilane (TMS) de formule brute  $Si(CH_3)_4$  a contribué à la cohérence de l'étude. Liquide à température ambiante, celui-ci a été entraîné sous atmosphère réduite de dihydrogène. Les conditions opératoires aboutissant à l'obtention d'un carbure de silicium stoechiométrique sur les substrats plan et monofilamentaire sont détaillées au paragraphe suivant.

### 4.3 Développement de nouveaux instruments de mesures thermiques et applications

Ce paragraphe est constitué de deux mémoires rédigés en vue de réaliser deux dépôts de brevet. Il est donc partagé en deux parties distinctes : la première fait référence aux capteurs de température, la seconde réfère aux sondes d'excitation thermique.

Etant donné les nombreuses similitudes dans la confection de ces instruments, la structure des deux parties est identique. L'objet du brevet est d'abord rappelé en introduction. Un état de l'art nous permet ensuite d'introduire le caractère innovant de l'invention proposée. La description du principe de fonctionnement puis du procédé pour la fabrication et pour l'étalonnage est décrite très précisément dans un troisième temps. Enfin, divers exemples d'utilisations et d'applications des instruments développés sont exposés respectivement en fin de document.



# TECHNIQUE ET CAPTEUR POUR LA MESURE DE TEMPÉRATURE PAR CONTACT ET PROCÉDÉ POUR LA FABRICATION ET L'ÉTALONNAGE DE CES CAPTEURS

C. Lorrette<sup>1,2</sup>, R. Pailler<sup>3,2</sup>, J.M. Goyhénèche<sup>4</sup>, and J.C. Batsale<sup>5,6</sup>

<sup>1</sup>Association pour le Développement de l'Enseignement et des Recherches auprès des universitaires, des centres de recherche et des entreprises d'Aquitaine (ADERA),  
Centre Condorcet, 162 rue A. Schweitzer, BP 196, 33608 Pessac

<sup>2</sup>Laboratoire des Composites ThermoStructuraux (LCTS),  
UMR 5801 : CNRS-SAFRAN-CEA-UB1, 3, allée de La Boétie, 33600 Pessac

<sup>3</sup>Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS),  
Délégation Aquitaine Limousin, BP 105, 33402 Talence Cedex

<sup>4</sup>Commissariat à l'Energie Atomique (CEA)  
Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine (CESTA), BP 2, 33114 Le Barp

<sup>5</sup>Université Bordeaux 1  
331 cours de la libération, 33405 Talence

<sup>6</sup>Laboratoire interétablissements Transferts Ecoulements Fluides et Energétiques (TREFFLE)  
UMR 5808 : CNRS-ENSAM-UB1, Esplanade des Arts et Métiers, 33405 Talence

Demande de brevet FR 07153 191 du 12/02/2007

## 1. OBJET

Au-delà de 1500°C, une mesure fiable de la température ne peut être réalisée que par pyrométrie optique, sans contact avec le milieu dont on souhaite connaître la température. En effet, si certains couples thermoélectriques à base de métaux précieux peuvent encore être employés pour des mesures par contact à ces niveaux de température, leur prix très élevé, leur étalonnage incertain et leur dérive en fonction de l'atmosphère et de la nature du milieu les rendent difficilement utilisables. Or, l'inconvénient de la mesure pyrométrique est d'une part sa limitation aux températures de surface et d'autre part sa calibration qui doit prendre en compte l'émissivité du corps visé et la transmittivité du milieu intermédiaire (gaz, fumées, hublots, etc.) traversé par le flux radiatif détecté.

L'objet de ce brevet est de proposer une technique pour la mesure de température par contact jusqu'à 1500 °C et au-delà de ce niveau de température. Le principe consiste à mesurer la variation de résistance électrique d'une fibre (diamètre quelques micromètres à plusieurs dizaines de micromètres), placée en contact avec le milieu, pour en déduire sa température, un étalonnage température/résistance ayant été réalisé au préalable sur un dispositif adapté. Si la mesure doit être effectuée au contact d'un matériau conducteur électrique, alors la fibre doit être revêtue d'un dépôt isolant. Dans le cas contraire, elle peut être utilisée après un simple traitement thermique. Pour faciliter sa manipulation, les extrémités du capteur (fibre revêtue) sont fixées à des mors sur lesquels sont réalisées les connexions électriques.

## 2. ETAT DE L'ART

La mesure de température fait l'objet d'une activité scientifique soutenue, tant l'enjeu pour la détermination précise de cette grandeur est important. Il s'agit soit de définir de nouvelles méthodes de mesure et les techniques expérimentales associées, soit de mettre en place des procédés permettant l'étalonnage de ces capteurs et leur relation avec les références de température internationales. L'invention proposée ici se rapporte au premier point.

Les principaux appareils permettant la mesure de température sont les suivants [1]:

- les thermomètres à dilation de gaz (thermomomètres) : la température est déduite d'une variation de volume ou pression d'une masse de gaz donnée
- les thermomètres à dilatation de liquide : la température est déduite d'une variation de volume du liquide. En pratique, on mesure la différence de dilatation entre le liquide et son enveloppe
- les thermomètres à dilatation solide : la température est déduite d'une variation de longueur d'un solide. En pratique, on mesure la différence d'allongement entre la tige et le support ou entre deux lames soudées de nature différente (bilame)
- les thermomètres à tension de vapeur (thermomomètre) : la température est déduite d'une variation de la pression de vapeur saturante d'un liquide, qui est indépendante des volumes occupés par le liquide et la vapeur (bulbe contenant un liquide en équilibre avec sa vapeur)
- les repères (peintures,...) : la température est déduite d'une variation physico-chimique réversible ou irréversible à une température critique donnée
- les thermistances (oxydes) : la température est déduite d'une variation de la résistance électrique d'un corps semi-conducteur
- les thermomètres à résistance métallique de platine, nickel ou cuivre : la température est déduite d'une variation de la résistance électrique d'un corps conducteur métallique
- les thermomètres à résistance de germanium ou de carbone : la température est déduite d'une variation de la résistance électrique d'un corps conducteur non métallique
- les couples thermoélectriques : la température est déduite de la force électromotrice générée dans un circuit comportant deux conducteurs de nature différente
- les pyromètres : la température est déduite du rayonnement infrarouge émis. Pour un pyromètre à radiation totale, le spectre entier est focalisé sur un capteur de température (couple thermoélectrique, résistance... ). Pour le pyromètre à radiation spectrale, seul un domaine restreint de longueur d'onde est reçu par un convertisseur photon-électron. Pour le pyromètre à disparition de filament, on compare la luminance monochromatique de la source à celle d'une lampe tare dont la relation courant/température est connue. Pour le pyromètre bichromatique, on déduit la température à partir de la mesure de luminance à deux longueurs d'onde.

Le domaine de température propre à chaque thermomètre est limité. Si beaucoup fonctionnent entre  $-100^{\circ}\text{C}$  et  $200^{\circ}\text{C}$ , le choix est d'autant plus restreint que l'on s'écarte de cette plage de température [1]. Ainsi, pour les hautes et très hautes températures qui nous intéressent dans cette invention :

- de  $500$  à  $800^{\circ}\text{C}$  : les couples thermoélectriques sont sans doute les mieux adaptés à la mesure, alors que les pyromètres offrent de grandes facilités dans le contrôle industriel continu
- au delà de  $800^{\circ}\text{C}$  : les pyromètres optiques doivent être privilégiés, bien que des couples thermoélectriques à base de métaux précieux puissent être utilisés jusqu'à  $1500^{\circ}\text{C}$ . L'utilisation de couples de métaux réfractaires, possible en pratique jusqu'à  $2400^{\circ}\text{C}$  pose de sérieux problèmes de maintenance et de sécurité d'emploi.

Typiquement, l'utilisation des thermomètres basés sur la relation entre la résistance électrique et la température ne dépasse pas 1000°C, alors qu'elle peut atteindre des températures proches du zéro absolu dans le cas des thermomètres à résistance de germanium ou de carbone. Pour ces derniers, le domaine d'emploi est guidé par la facilité de mesure aux basses températures et l'inconvénient de la sensibilité aux cycles thermiques du carbone pour les hautes températures. Ainsi, typiquement, le domaine d'emploi d'un thermomètre au carbone s'étend de 0.05 K à 300 K [2]. Dans l'invention proposée, ce problème est résolu par le traitement thermique et le gainage des capteurs.

Les thermomètres carbone sont de petits cylindres de carbone (longueur de plusieurs millimètres, diamètre de 1 à 2 millimètre) dont on détermine la résistance par une méthode à 2 fils. On trouve aussi sur le marché des thermomètres carbone-verre constitués d'un dépôt de carbone amorphe sur un substrat en verre [2]. Dans l'invention proposée, une fibre de carbone de diamètre micrométrique et de longueur millimétrique est utilisée. Cette dimension transverse extrêmement réduite conduit d'une part à une température uniforme dans la section du capteur [3, 4] et d'autre part à des temps de réponse estimés à quelques microsecondes ( $\tau = 3\rho c_p R^2 / \lambda$ , avec : conductivité thermique  $\lambda = 80 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ , masse volumique  $\rho = 2000 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ , capacité thermique  $c_p = 2200 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  et rayon  $R = 5 \text{ }\mu\text{m}$ ).

A notre connaissance, bien que l'idée d'utiliser des filaments inorganiques pour fabriquer des capteurs (optiques notamment) à haute température ait déjà été évoquée [5], aucun capteur de température par contact ne se base sur l'utilisation d'une fibre de carbone, ni dans la littérature scientifique ouverte, ni dans les brevets.

Ainsi, les inventions concernant de nouveaux capteurs, nombreuses pour les niveaux de températures ne dépassant pas 1000 à 1300°C, concernent le plus souvent des mesures sans contact et demeurent dans tous les cas beaucoup plus rares au-delà de 1500°C. A très haute température, on relèvera par exemple un capteur de température basé sur le principe du pyromètre à radiation totale associé à des éléments sensibles résistifs plans métalliques ou céramiques/métal [6]. Plus rares encore sont les travaux concernant le développement de nouveaux matériaux pour améliorer les performances des capteurs existants, comme les thermocouples [7] ou les capteurs résistifs [8] par exemple. Souvent, les capteurs sont développés pour des applications particulières, comme la mesure de température des gaz de combustion, des moteurs ou encore des fours verriers. On peut citer par exemple un capteur résistif dont le très faible bruit de mesure le prédestine à des applications de type calorimétrie [9].

La majeure partie des études sur les capteurs de température résistifs concerne les éléments sensibles réalisés sous forme de dépôts plans ou de films minces sur substrats céramiques isolants. Ainsi, on retiendra :

- un capteur métallique (*Mo*, *W* ou *Mn*) sur substrat céramique (*Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>*) pour la mesure de température dans les fours de cuisson [10]
- un film mince de nickel sur substrat d'alumine dont les propriétés mécaniques garantissent une manipulation aisée du capteur [11]
- un dépôt linéique « zig-zag » mince de platine (traité à haute température) sur un substrat de nitrure d'aluminium revêtu d'un dépôt protecteur à base de silicium [12]
- un dépôt de platine sur substrat céramique revêtu d'une couche de passivation pour limiter son oxydation et permettre une utilisation jusqu'à 1000°C [13]
- une méthode pour la réalisation d'un circuit résistif de platine sur substrat isolant, dont les dimensions micrométriques garantissent un temps de réponse rapide et une résistance électrique élevée [14]
- un dépôt d'oxyde de vanadium sur un film de nitrure de silicium pour réaliser un élément sensible de détecteur radiatif à température ambiante [15]

Utilisant un matériau (nanotube de carbone) plus proche de ceux employés dans l'invention proposée ici, un brevet de Y. Bando and al. [16] consiste à déterminer la température à partir d'une mesure de la variation de longueur

à l'échelle micrométrique, sur le principe d'un thermomètre à dilatation de solide. Mais ce capteur ne peut être utilisé pour les hautes températures.

Enfin, des inventions utilisent le principe de variation de la résistivité électrique d'un fil, soit à partir d'un filament disposé dans une ampoule protectrice (montage identique à celui de l'ampoule électrique) pour réaliser une mesure à distance [17], soit à partir d'un filament sérigraphié sur un support flexible [18] pour réaliser une mesure par contact à des températures voisines de l'ambiante.

En conclusion, le caractère innovant de l'invention se positionne comme suit :

**la technique de mesure** qui consiste à utiliser une fibre, appelée aussi filament, d'un diamètre compris entre quelques micromètres et plusieurs dizaines de micromètres, dont on mesure la résistance électrique pour en déduire la température moyenne, supposée identique à celle du milieu au contact duquel elle est installée. Si le milieu dont on souhaite connaître la température est un conducteur électrique, alors la fibre est revêtue d'un dépôt isolant électrique. Le choix de la nature de la fibre et du dépôt peut permettre de développer un capteur utilisable jusqu'à très haute température (au-delà de 1500°C) ;

**le capteur de température** réalisé à partir d'une fibre de carbone et d'un dépôt isolant électrique. Ici, il est proposé une fibre de type XN05 et un dépôt *BN* ou *SiC/BN*. Mais d'autres types de fibres de carbone et d'autres natures de dépôt peuvent être envisagés, l'utilisation d'une fibre de carbone autorisant des applications à très haute température

**le procédé de fabrication** décrit en 5 étapes au paragraphe 3.2 : (i) choix de la fibre, (ii) découpe et installation sur un dispositif de préhension, (iii) traitement thermique de la fibre ; (iv) réalisation du dépôt ; (v) traitement thermique du capteur

**le procédé d'étalonnage** qui consiste à déterminer la fonction mathématique reliant la résistance du capteur à sa température : (i) soit dans un four, à partir d'une référence donnée par un couple thermoélectrique, pour un étalonnage à haute température ; (ii) soit sur l'installation dédiée à la fabrication du capteur, à partir d'une référence donnée par un pyromètre optique, pour un étalonnage à très haute température.

### 3. DESCRIPTION DE L'INVENTION DE BASE

#### 3.1. Principe de fonctionnement

Le capteur de température est constitué par une fibre de longueur  $L$  revêtue ou non d'un dépôt permettant une isolation électrique lors l'utilisation au contact d'un matériau conducteur. Lors de la phase d'étalonnage, on détermine expérimentalement la fonction  $f_E$  reliant la température  $T_C$  (K) du capteur à sa résistance électrique  $R_C$  ( $\Omega$ ) :

$$R_C = f_E(T_C) \quad (1)$$

Lors de la phase d'utilisation, on mesure la résistance  $R_C$  du capteur pour en déduire sa température  $T_C$  via la fonction d'étalonnage  $f_E$ .

En phase d'étalonnage comme en phase d'utilisation, la température du capteur doit être uniforme sous peine d'entraîner une variation de la résistance électrique  $R_C$  le long du capteur et finalement de dégrader l'incertitude de mesure.

Lors de l'élaboration du capteur, des niveaux de température déterminants doivent être pris en compte :

$T_F$  : température d'élaboration de la fibre, fixée par le fabricant et variable suivant les matériaux. En pratique, il est toujours très difficile de connaître avec précision (niveau de température, durée) le traitement thermique qu'a subi une fibre lors de son élaboration, cette information étant confidentielle pour le fabricant. C'est la raison pour laquelle il est toujours préférable de réaliser un traitement thermique des fibres avant de les utiliser à haute température

$T_D$  : température atteinte par la fibre lors du dépôt de l'isolant électrique

$T_U$  : température atteinte lors de l'utilisation du capteur

$T_E$  : température atteinte lors de l'étalonnage du capteur. Par définition, cette température doit être supérieure à la température d'utilisation :  $T_E > T_U$

Par conséquent,

- pour garantir la stabilité thermochimique de la fibre lors du dépôt du revêtement isolant, cette dernière doit être préalablement traitée à une température  $T_1$  supérieure à la température de dépôt :  $T_1 > T_D$ ;
- pour garantir la stabilité thermochimique du capteur, ce dernier doit être traité à une température  $T_2$  supérieure à la température d'étalonnage :  $T_2 > T_E$ ;
- pour prévenir d'éventuels effets thermomécaniques entre la fibre et le dépôt lors des montées en température, il est souhaitable que la température  $T_1$  soit supérieure à la température  $T_2$  :  $T_1 > T_2$ .

Donc finalement :  $T_1 > T_2 > T_E > T_U$ . Ainsi,

- dans le cas d'une mesure de température au contact d'un matériau isolant électrique, la fabrication du capteur consiste simplement à réaliser un traitement thermique de la fibre à la température  $T_1$ ;
- dans le cas d'une mesure de température au contact d'un matériau conducteur électrique, la fabrication du capteur consiste tout d'abord à réaliser un traitement thermique de la fibre à la température  $T_1$  pour s'assurer de sa stabilité, puis de la revêtir d'un dépôt isolant électrique, et enfin à réaliser un deuxième traitement thermique à la température  $T_2$  afin de garantir la stabilité du capteur (fibre + dépôt).

Pour faciliter la manipulation du capteur, ses extrémités sont fixées sur des mors. Pour faciliter sa fabrication, l'ensemble des opérations de traitement thermique et d'étalonnage à très haute température (au-delà de 1000-1500°C) est réalisé sur le même dispositif expérimental décrit au paragraphe 4. Sur ce moyen de mesure, un étalonnage approché est également possible à haute température (de 20 à 800-1500°C). Enfin, sur un deuxième montage décrit au paragraphe 5, un étalonnage précis à haute température (de 20 à 800-1500°C) peut être réalisé.

### 3.2. Procédé pour la fabrication des capteurs

La qualité du capteur dépend notamment : (i) de sa stabilité thermochimique, (ii) de son isolation électrique dans le cas d'une mesure au sein d'un matériau conducteur, (iii) de la résistance mécanique de la fibre qui garantit la solidité du capteur et (iv) de la sensibilité de la résistance électrique de la fibre à la température. Ces quatre critères conditionnent le procédé de fabrication.

**3.2.1** - La première étape lors de la fabrication du capteur consiste à choisir une fibre qui, une fois traitée à très haute température, présente à la fois des propriétés mécaniques convenables et une sensibilité importante de sa résistivité électrique à la température (voir Sauder [3] et Pradère [4]). Pour la réalisation de nos capteurs, nous avons choisi la fibre XN05 (fibre de carbone ex-brai isotrope produite par Nippon Graphite Fiber, diamètre moyen 10  $\mu m$ ) dont le comportement mécanique et la résistivité électrique sont présentés aux figures 1a et 1b.



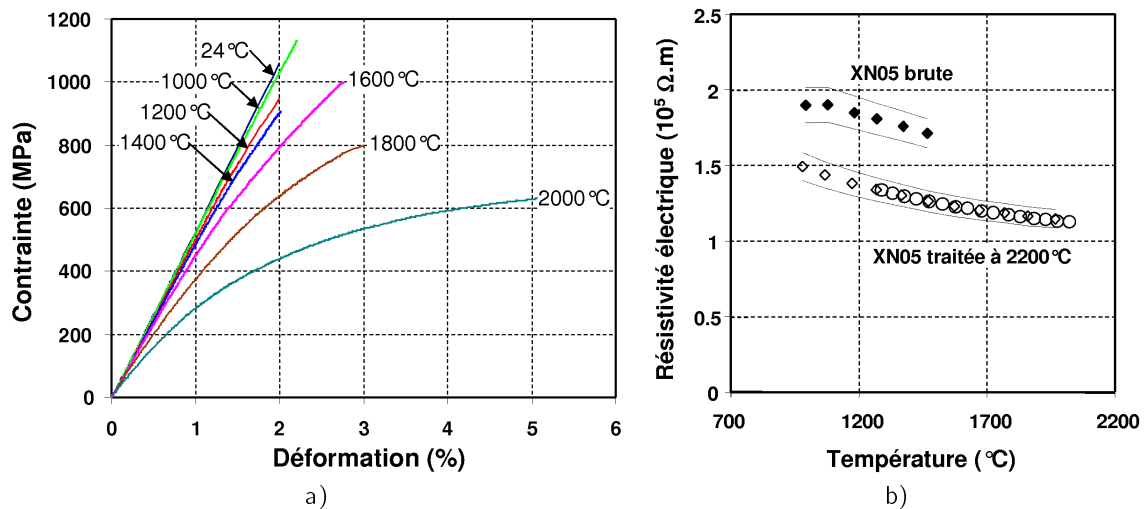


Figure 1. a) Courbes de traction à différentes températures pour la fibre XN05 traitée à  $T_1 = 2200^\circ\text{C}$  [3], b) Résistivité électrique de la fibre XN05 [4].

**3.2.2 -** La deuxième étape consiste à découper la fibre à la longueur  $L$ , puis à lui associer un dispositif de préhension qui permettra d'une part de manipuler facilement le capteur et d'autre part de réaliser simplement les connexions électriques. Il est souhaitable que la fibre soit rendue définitivement solidaire de cet accessoire nécessaire non seulement en phase de fabrication et d'étalonnage du capteur mais également en phase d'utilisation.

Le choix de la longueur  $L$  est déterminant puisqu'il fixe à la fois la dimension du capteur, c'est-à-dire l'étendue géométrique concernée par la mesure de température, mais également sa résistance électrique  $R_C$  définie par :

$$R_C = \frac{\rho_{EC} L}{S} \quad (2)$$

où  $\rho_{EC}$  ( $\Omega.m$ ) représente la résistivité électrique de la fibre et  $S$  ( $m^2$ ) sa section.

Pour les capteurs que nous avons réalisés, nous avons choisi une longueur  $L$  de l'ordre de  $50\text{ mm}$  et un dispositif de préhension constitué par deux mors en carbone adaptables sur tous nos dispositifs expérimentaux. A ses extrémités, la fibre est fixée aux mors à l'aide d'une colle carbone [19]. Un schéma du montage est présenté à la figure 2.

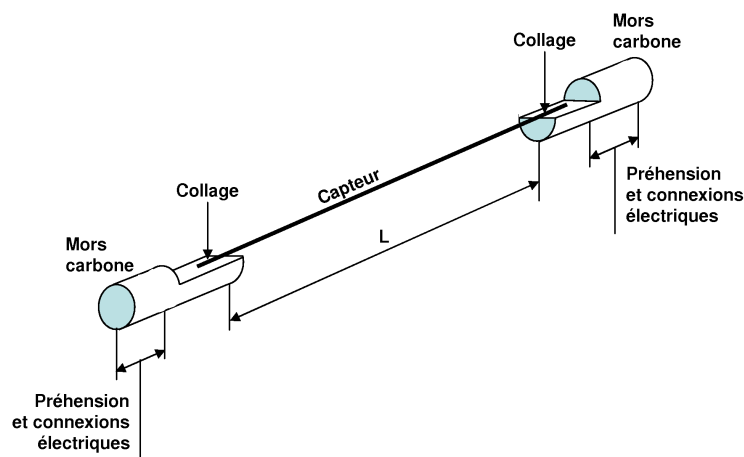


Figure 2. Schéma de principe du capteur et des mors en carbone

**3.2.3 -** La troisième étape consiste à traiter thermiquement la fibre à la température  $T_1$  pour garantir sa stabilité thermochimique. La fibre choisie pour l'élaboration de nos capteurs a subi, lors de son élaboration, un traitement thermique de quelques minutes à  $T_F = 1800^\circ\text{C}$ . Nous choisissons de la stabiliser thermiquement à  $T_1 = 2200^\circ\text{C}$ .

**3.2.4** - La quatrième étape consiste à réaliser un dépôt isolant électrique. Pour la fabrication de nos capteurs, nous avons choisi d'utiliser le nitrure de bore (BN), bon conducteur thermique, mauvais conducteur électrique et stable à très haute température (fusion à 2600-2800°C). D'autres types de dépôts peuvent également être envisagés, du moment qu'ils satisfont ces deux dernières conditions. S'il demeure souhaitable, le caractère bon conducteur thermique n'est pas indispensable car le diamètre du capteur est généralement petit (une dizaine de micromètres) par rapport aux variations spatiales de température à mesurer.

Enfin, le choix du type de dépôt est également lié à son éventuelle interaction avec le carbone de la fibre. Pour pallier cet inconvénient dans le cas d'un dépôt de nitrure de bore, il est souhaitable d'intercaler une couche de carbure de silicium (SiC) entre les deux matériaux afin :

- d'empêcher la diffusion du carbone dans la couche de nitrure de bore. Ce phénomène, irréversible et favorisé par un niveau de température élevé, conduit à dégrader les propriétés d'isolation électrique du dépôt. Il est mis en évidence à la figure 3 sur laquelle on observe la diffusion du carbone à travers l'interface représentée par le trait interrompu vertical.
- d'empêcher la réaction  $NH_3 + C \rightarrow HCN + CH_4$  qui dégraderait la fibre lors du dépôt de nitrure de bore. Ce dernier point est surtout valable pour les fibres dont la texture est désordonnée. Dans le cas de la fibre XN05 traitée à  $T_1 = 2200^\circ C$ , le phénomène est très peu présent.

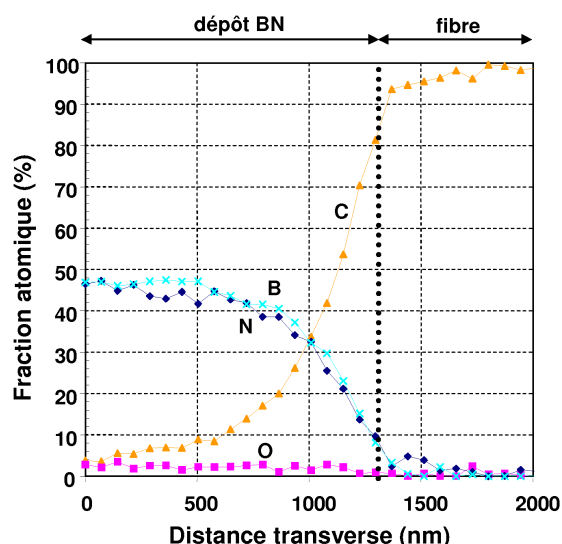


Figure 3. Composition chimique d'un capteur XN05/BN au voisinage de l'interface entre la fibre et le dépôt. Profil obtenu par spectrométrie d'électron Auger

Le dépôt isolant à la surface de la fibre peut être réalisé à partir d'un précurseur liquide, par la technique de dépôt chimique en phase vapeur, suivant des conditions de température, pression, débit et durée d'exposition définies en fonction de la nature du revêtement et du dispositif expérimental. Pour les fibres de carbone revêtues de carbure de silicium et de nitrure de bore, les conditions que nous avons identifiées sont les suivantes :

#### Dépôt de carbure de silicium

Précurseur	: tétraméthylsilane ( <i>TMS</i> )
Vecteur	: dihydrogène ( $H_2$ )
Température ( $T_D$ )	: 1100°C
Pression	: 0,3 bar
Débit <i>TMS</i>	: 10 sccm
Débit $H_2$	: 8 sccm
Durée	: 15 minutes (épaisseur 500 nm)

#### Dépôt de nitrure de bore

Précurseur	: tridiméthylaminoborane ( <i>TDMAB</i> )
Réactif	: ammoniac ( $NH_3$ )
Vecteur	: dihydrogène ( $H_2$ )
Température	: 1300°C
Pression	: 0,3 bar
Débit $NH_3$	: 100 sccm
Débit $H_2$	: 15 sccm
Durée	: ajustable selon l'épaisseur souhaitée (voir cinétique de dépôt figure 4a)

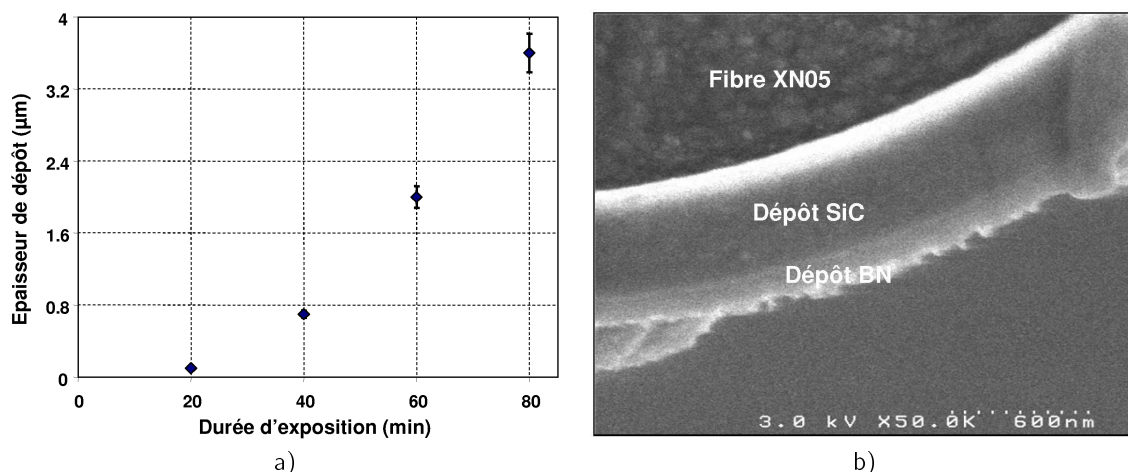


Figure 4. a) Dépôt de nitrure de bore. Variation de l'épaisseur en fonction de la durée, b) Vue en coupe d'un capteur XN05/SiC/BN.

Pour les capteurs que nous avons réalisés, nous avons déposé une couche de carbure de silicium d'épaisseur inférieure à 500 nm, puis une couche de nitrure de bore d'épaisseur 500 à 2500 nm. La coupe transverse d'un capteur est présentée à la figure 4b. Sur ce capteur, le dépôt de carbure de silicium est d'épaisseur nominale, tandis que celui de nitrure de bore doit être complété s'il est nécessaire de garantir une bonne isolation électrique.

**3.2.5** - La cinquième étape dans la fabrication des capteurs consiste à traiter thermiquement l'ensemble fibre+dépôt isolant jusqu'à une température supérieure à la température d'étalonnage. Nous avons ainsi stabilisé thermiquement nos capteurs à  $T=1800^{\circ}\text{C}$ .

### 3.3. Procédé pour l'étalonnage des capteurs

L'étalonnage des capteurs est la dernière étape de leur fabrication. Elle consiste à déterminer la fonction  $f_E$  en chauffant le capteur de manière uniforme et en mesurant simultanément sa température de surface  $T_C$  et sa résistance électrique  $R_C$ .

Le procédé d'étalonnage doit être adapté en fonction du domaine de température visé, afin de raccorder l'expérience à la référence de température la plus fiable, en prenant en compte les contraintes économiques et technologiques du laboratoire. Ainsi, on distingue :

- l'étalonnage à haute température : de  $20^{\circ}\text{C}$  à  $800\text{-}1500^{\circ}\text{C}$  pour lequel il est souhaitable d'utiliser un couple thermoélectrique,
- l'étalonnage à très haute température : au-delà de  $1000\text{-}1500^{\circ}\text{C}$  pour lequel il est souhaitable d'utiliser un pyromètre optique.

Pour nos capteurs, si  $T_E < 1000^{\circ}\text{C}$ , alors on effectue un étalonnage à haute température, tandis que si  $T_E > 1000^{\circ}\text{C}$ , alors on effectue un étalonnage à très haute température.

**3.3.1 - Etalonnage à haute température** Le capteur est disposé entre deux blocs de matériau très conducteur et stable jusqu'à la température  $T_E$ . Un couple thermoélectrique est inséré dans l'un des deux massifs. Le tout est placé dans un four qui permet un chauffage homogène du montage ; la forte conductivité des blocs leur permettant d'être quasiment isothermes. L'opération d'étalonnage consiste alors à relever la résistance électrique  $R_C$  du capteur pour chaque valeur de température  $T_C$  indiquée par le couple thermoélectrique. On en déduit la fonction d'étalonnage  $f_E$  du capteur. Un exemple d'étalonnage de  $20^{\circ}\text{C}$  à  $1000^{\circ}\text{C}$  est présenté à la figure 5.

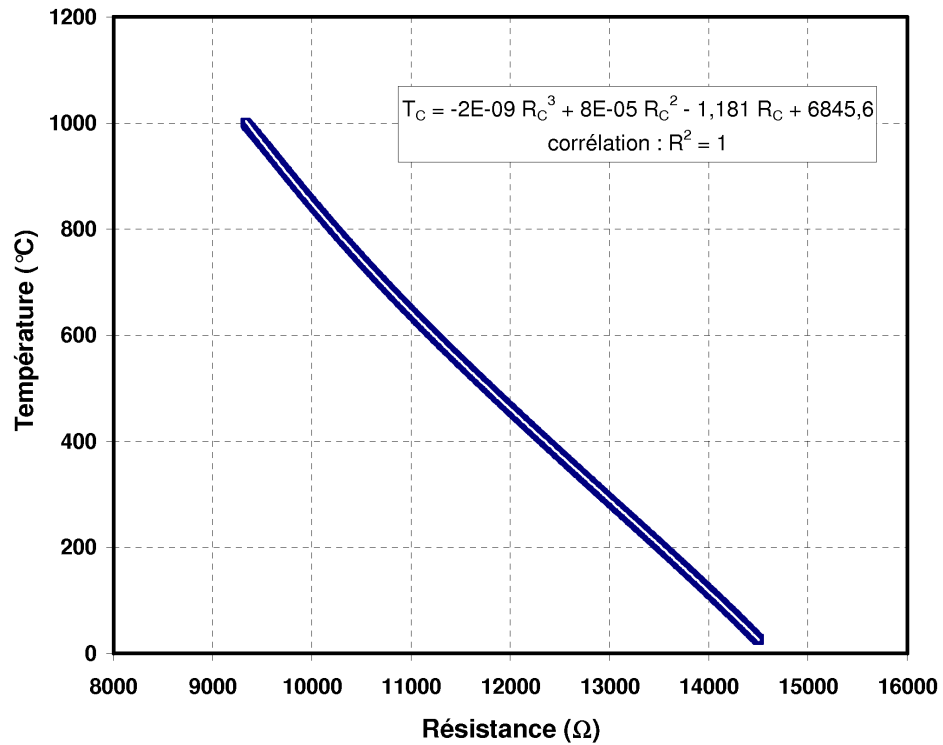


Figure 5. Courbe d'étalonnage à haute température d'un capteur XN05/SiC/BN (fonction d'étalonnage en blanc sur le graphe)

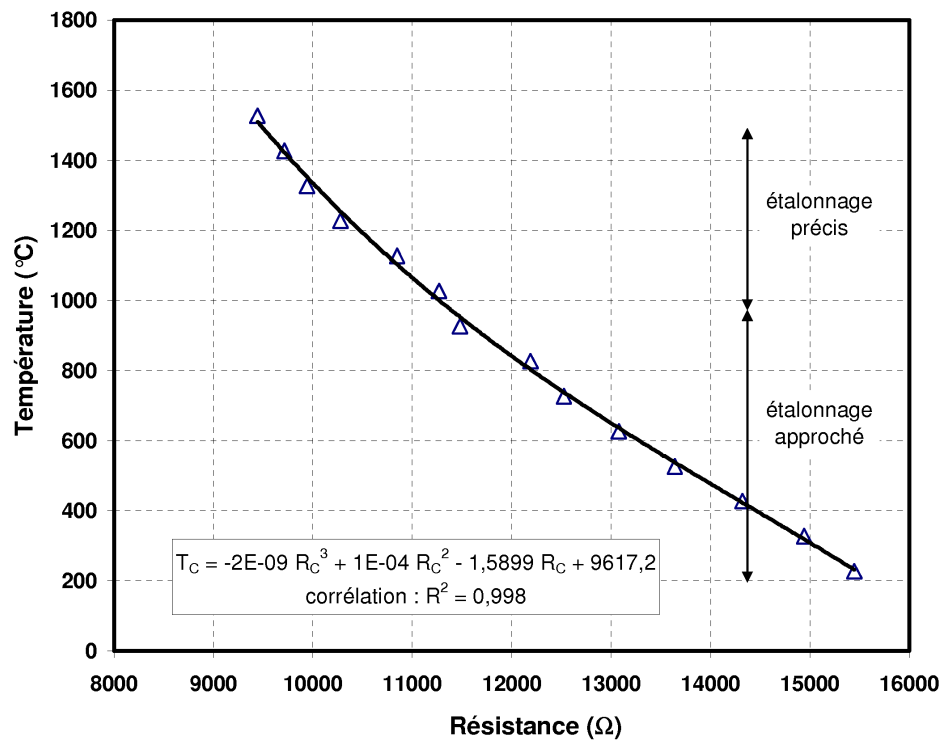


Figure 6. Courbe d'étalonnage à très haute température d'un capteur XN05/SiC/BN (fonction d'étalonnage en noir sur le graphe)

**3.3.2 - Etalonnage à très haute température** Le dispositif expérimental utilisé est celui employé lors de la fabrication du capteur. Ainsi, ce dernier est chauffé par effet Joule et sa résistance électrique  $R_C$  est relevée pour chaque valeur de température  $T_C$  indiquée par le pyromètre optique. On en déduit la fonction d'étalonnage  $f_E$  du capteur.

Sur le même montage, il est également possible d'obtenir un étalonnage approché pour une gamme de température inférieure à la température minimale pouvant être mesurée par le pyromètre. En effet, à chaque température  $T_C$ , l'équilibre thermique du capteur est établi en considérant d'une part la source de chaleur due à l'effet Joule dans la fibre et d'autre part les pertes radiatives à la surface du capteur, ce dernier étant quasiment isotherme [3]. Une formulation analytique du problème thermique conduit alors l'auteur à une relation linéaire entre  $\sigma_B T_C^4$  (où  $\sigma_B = 5,67 \cdot 10^{-8} W \cdot m^{-2} \cdot K^{-4}$  est la constante de Boltzman) et  $P_C = R_C I_C^2$  (où  $I_C$  est le courant dans la fibre). Cette relation, définie dans la gamme de fonctionnement du pyromètre, peut alors être extrapolée pour des températures  $T_C$  inférieures. On en déduit alors directement une fonction d'étalonnage. Un exemple d'étalonnage de 225°C à 1525°C est présenté à la figure 6.

## 4. DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ASSOCIÉ À LA FABRICATION ET À L'ÉTALONNAGE À TRÈS HAUTE TEMPÉRATURE DES CAPTEURS

### 4.1. Principe de fonctionnement

Le dispositif expérimental est présenté à la figure 7.

Le traitement thermique des fibres et des capteurs constitués (fibres+dépôts) est réalisé en chauffant le spécimen par effet Joule, tout en contrôlant simultanément sa température à l'aide d'un pyromètre bichromatique.

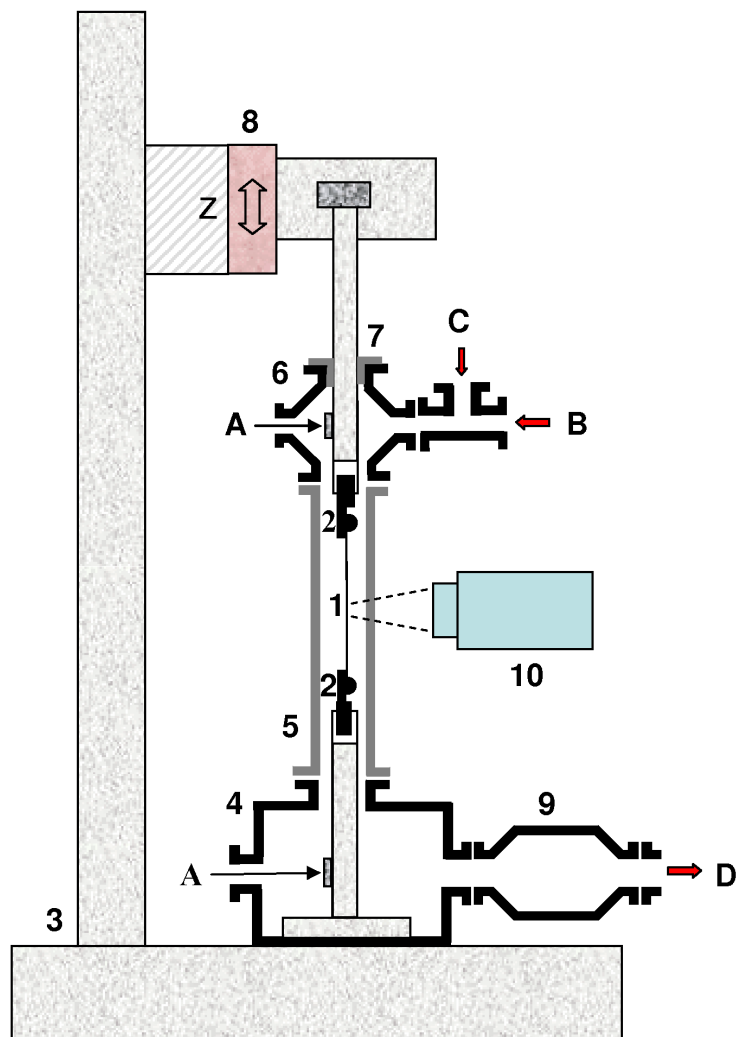
Le dépôt de carbure de silicium est réalisé par la technique de dépôt chimique en phase vapeur. Pour cela, le *TMS*, précurseur liquide retenu, est vaporisé à température ambiante puis entraîné jusqu'à l'enceinte de dépôt sous atmosphère contrôlée de  $H_2$ . La stoechiométrie du *SiC* déposé est pilotée par les débits de *TMS* et  $H_2$ . Le chauffage de la fibre est réalisé par effet Joule.

Le dépôt de nitrure de bore est réalisé par la technique de dépôt chimique en phase vapeur. Pour cela, le *TDMA*, précurseur liquide retenu, est vaporisé à 35°C puis entraîné par  $H_2$  jusqu'à l'enceinte de dépôt dans laquelle il est mélangé à  $NH_3$ . La présence de ce dernier est nécessaire pour assurer la stoechiométrie du nitrure de bore déposé [20]. Comme précédemment, le chauffage par effet Joule localisé sur la fibre garantit un dépôt uniforme tout au long du capteur.

L'étalonnage des capteurs consiste à chauffer progressivement le spécimen par effet Joule (rampe de température), sous vide secondaire ou sous balayage de gaz neutre, tout en mesurant simultanément sa température (pyromètre bichromatique) et sa résistance électrique. La résistivité électrique de la fibre de carbone étant relativement élevée (figure 1), sa conductivité thermique, voisine de celle du capteur ne dépasse généralement pas quelques dizaines de  $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$  [19]. En conséquence, le profil de température le long du capteur est uniforme et la résistance électrique peut être mesurée sans prendre de précautions particulières, en se raccordant simplement à ses extrémités [18-19].

### 4.2. Description détaillée du montage

Pièce	Fonction
1	Fibre ou capteur.
2	Mors.
3	Support métallique. Le dispositif expérimental est structuré par un support métallique sur lequel sont fixés les différents éléments.
4	Enceinte métallique inférieure. L'enceinte métallique inférieure permet : (i) de fixer le mors inférieur au bâti par l'intermédiaire d'une tige, (ii) d'assurer l'alimentation électrique de la fibre à travers un passage étanche, et (iii) d'assurer l'évacuation des gaz.



- 1 Fibre ou capteur
- 2 Mors
- 3 Support métallique
- 4 Enceinte métallique inférieure
- 5 Enceinte quartz
- 6 Enceinte métallique supérieure
- 7 Passage étanche en translation
- 8 Système de positionnement vertical
- 9 Pompe à vide secondaire (uniquement lors de l'étalonnage)
- 10 Pyromètre optique
- ① Alimentation électrique de la fibre
- ② Alimentation gaz
- ③ Alimentation gaz
- ④ Evacuation gaz

Figure 7. Dispositif expérimental pour la fabrication et l'étalonnage à très haute température des capteurs

5	<i>Enceinte quartz.</i> L'enceinte quartz permet de contrôler visuellement l'état du capteur lors de sa fabrication. Elle permet également de mesurer la température à l'aide du pyromètre optique.
6	<i>Enceinte métallique supérieure.</i> L'enceinte métallique supérieure permet : (i) de fixer le mors supérieur au bâti par l'intermédiaire d'une tige, (ii) d'assurer l'alimentation électrique de la fibre à travers un passage étanche, et (iii) d'assurer l'alimentation des gaz lorsque le dispositif est en configuration dépôt.
7	<i>Passage étanche par translation.</i> Le passage étanche en translation permet de faire coulisser l'enceinte en quartz le long de la tige supérieure afin de permettre d'installer la fibre ou de retirer le capteur réalisé.
8	<i>Système de positionnement vertical.</i> Un système de positionnement vertical est nécessaire non seulement pour adapter la distance entre les deux tiges à la longueur de la fibre utilisée pour la réalisation du capteur, mais également pour disposer le capteur de manière rectiligne dans l'enceinte en quartz en lui appliquant une très légère tension.
9	<i>Pompe à vide secondaire.</i> La pompe à vide secondaire est utilisée lors du traitement thermique et de l'étalonnage du capteur. Au cours de ces opérations, ce dernier est placé sous vide secondaire (pression de $10^{-5}$ à $10^{-8}$ mbar) pour éviter son oxydation.
10	<i>Pyromètre optique.</i> La température du capteur est mesurée à l'aide d'un pyromètre optique qui vise sa surface à travers l'enceinte quartz.
A	<i>Alimentation électrique de la fibre.</i> Des passages étanches permettent l'alimentation électrique de la fibre destinée d'une part au chauffage par effet Joule, et d'autre part à la mesure de résistance électrique lorsque le dispositif est en configuration étalonnage.
B	<i>Alimentation en gaz.</i> Si le dispositif fonctionne en dépôt de <i>SiC</i> , alors l'alimentation fournit du <i>TMS</i> . Si le dispositif fonctionne en dépôt de <i>BN</i> , alors l'alimentation fournit du <i>TDMBA</i> entraîné par $H_2$ . Si le dispositif est en configuration traitement thermique ou étalonnage, alors l'alimentation est obturée.
C	<i>Alimentation en gaz.</i> Si le dispositif fonctionne en dépôt de <i>SiC</i> , alors l'alimentation fournit du $H_2$ . Si le dispositif fonctionne en dépôt de <i>BN</i> , alors l'alimentation fournit du $NH_3$ . Si le dispositif est en configuration traitement thermique ou étalonnage, alors l'alimentation est obturée.
D	<i>Evacuation des gaz.</i> Si le dispositif fonctionne en dépôt, alors l'évacuation est réalisée à travers une pompe à vide primaire. Si le dispositif est en configuration traitement thermique ou étalonnage, alors l'évacuation est réalisée à travers une pompe à vide secondaire puis une pompe à vide primaire.

## 5. DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ASSOCIÉ À L'ÉTALONNAGE À HAUTE TEMPÉRATURE DES CAPTEURS

### 5.1. Principe de fonctionnement

Le dispositif expérimental est présenté à la figure 8. Sur ce montage, le capteur est maintenu par ses mors entre deux blocs de carbone. L'ensemble, positionné sur une structure également en carbone, est disposé à l'intérieur d'un four, sous vide secondaire (pression de  $10^{-5}$  à  $10^{-8}$  mbar) ou sous balayage de gaz inerte. Un couple thermoélectrique mesure la température du bloc de carbone supérieur. Ce dernier étant bon conducteur (plusieurs dizaines de  $W.m^{-1}.K^{-1}$ ), sa température est uniforme et peu différente de celle du capteur. L'opération d'étalonnage consiste à chauffer progressivement le spécimen (rampe de température) tout en mesurant simultanément sa température (couple thermoélectrique) et sa résistance électrique.

## 5.2. Description détaillée du montage

Pièce	Fonction
1	Capteur.
2	Mors.
3	Thermocouple. Un couple thermoélectrique gainé est inséré dans le bloc conducteur supérieur. Sa zone sensible est localisée dans l'axe du montage, à proximité de la face inférieure du bloc.
4	Support carbone. Le dispositif expérimental est structuré par un support en carbone sur lequel sont fixés les différents éléments.
5	Support inférieur. Un support inférieur en carbone permet d'ajuster le positionnement vertical des blocs conducteurs de sorte que leur interface coïncide avec la position du capteur.
6	Plaque inférieure. Une plaque en carbone assure un maintien uniforme du bloc conducteur inférieur.
7	Bloc conducteur inférieur. Massif de carbone qui permet une bonne homogénéité de température sur toute la longueur L du capteur.
8	Bloc conducteur supérieur. Massif de carbone qui permet une bonne homogénéité de température sur toute la longueur L du capteur.
9	Plaque supérieure. Une plaque en carbone assure un maintien uniforme du bloc conducteur supérieur.
10	Maintien supérieur. Une vis impose une légère pression à l'empilement de pièces afin de maintenir l'ensemble en place au cours de l'essai.

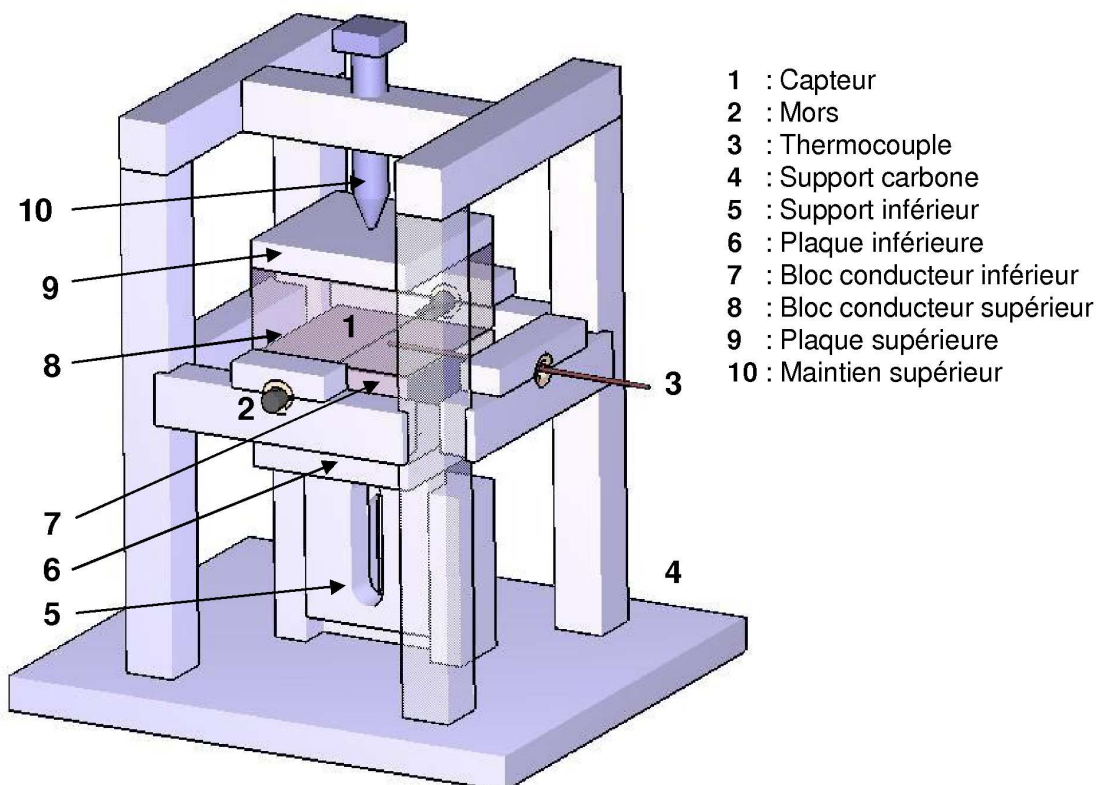


Figure 8. Dispositif expérimental pour l'étalonnage à haute température



## 6. EXEMPLES D'UTILISATION DU CAPTEUR

La stabilité du capteur est illustrée à la figure 9 sur laquelle sont reportées trois séries de mesures de la résistance électrique en fonction de la température, de 20°C à 1000°C. Les résultats obtenus montrent la répétitivité de la mesure. Entre deux essais, aucun démontage de l'installation n'a été effectué. L'expérience a été réalisée sur un capteur XN05/BN car le niveau de température atteint n'était pas suffisamment haut pour risquer une dégradation de l'isolation électrique due à la diffusion du carbone dans le nitrure de bore.

La fidélité du capteur est illustrée à la figure 10. Préalablement à l'essai, une fibre XN05/SiC/BN a été réalisée et étalonnée à haute température jusqu'à 1200°C sur le dispositif présenté à la figure 8. Puis, une deuxième expérience a été menée sur le même dispositif mais en remplaçant cette fois les blocs de carbone par des blocs d'alumine. En reportant la température mesurée par le capteur en fonction de celle mesurée par le couple thermoélectrique inséré dans le bloc d'alumine supérieur, on observe une concordance satisfaisante des résultats.

## 7. APPLICATIONS INDUSTRIELLES

Bien que les capteurs développés puissent être utilisés à partir de la température ambiante, les applications industrielles de l'invention concernent principalement le domaine des très hautes températures pour lesquelles il n'existe pas de moyen fiable de mesure par contact. Les secteurs concernés relèvent principalement de l'aéronautique (freinage, moteurs, turbines, tuyères) et du spatial (rentrée atmosphérique). Ils peuvent également concerner certaines filières de production d'énergie en cours de développement comme les réacteurs de fusion contrôlée ou les centrales nucléaires à fission de quatrième génération.

Dans tous ces domaines, le problème du dimensionnement des structures à haute température est une préoccupation majeure. Qu'il s'agisse de mesurer les propriétés (mécaniques, thermiques, ...) intrinsèques des matériaux, l'évolution thermomécanique des structures soumises aux chargements opérationnels (fluage sous contrainte par exemple), ou encore la transformation physico-chimique sous haute densité de flux (ablation des protections thermiques par exemple), il est toujours nécessaire de connaître la température des matériaux.

Aussi, l'invention trouve naturellement des applications que l'on peut regrouper en trois catégories :

**la mesure de température sur les installations de laboratoire** Destinées à l'étude des matériaux (mesure de propriétés, essais de durée de vie, etc.), ces installations concernent généralement des échantillons de petite dimension dont on souhaite connaître précisément la température à coeur. C'est par exemple le cas de la mesure de conductivité thermique qui, selon les techniques, nécessite une instrumentation basée sur la mesure de température par contact.

**la mesure de température sur les installations prototypes** Le comportement des matériaux à très haute température met souvent en jeu simultanément de nombreux phénomènes physiques, chimiques, mécaniques, etc. dont les interactions sont rarement bien maîtrisées. Pour appréhender ces questions, il est souvent nécessaire de développer des installations prototypes dans lesquelles les structures sont testées dans des conditions les plus représentatives des spécifications opérationnelles. On peut penser par exemple aux dispositifs d'irradiation à haut flux comme les fours solaires ou les jets plasmas qui permettent de simuler la rentrée atmosphérique ou encore le flux de chaleur sur les réfractaires des réacteurs de fusion contrôlée. Ces essais, extrêmement coûteux, sont très instrumentés pour permettre de retirer un maximum d'informations des expériences. L'invention trouve ici naturellement sa place puisqu'elle permet une mesure interne de la température (telle que celle présentée à la figure 10) alors que jusqu'ici, seules des mesures surfaciques étaient accessibles par pyrométrie optique.

**la mesure de température sur les installations opérationnelles** Contrôler le vieillissement des matériaux est un enjeu en relation directe avec l'augmentation de la durée de vie des installations, donc avec l'augmentation de leur sûreté et de leur rentabilité : pouvoir prolonger la durée de vie d'une centrale nucléaire parce que l'on est capable de prouver le bon état de ses composants n'est pas sans intérêt pour son exploitant. Ici encore, il est nécessaire de disposer de capteurs de température permettant des mesures par contact au coeur des matériaux jusqu'à très haute température. Outre la configuration triviale de mesure de température consistant

à intercaler le capteur entre deux pièces, l'invention proposée ouvre une voie d'investigation particulièrement intéressante en utilisant comme élément de base la fibre de carbone, constituant élémentaire pour bon nombre de matériaux composites. On peut alors imaginer des capteurs directement intégrés aux matériaux lors de leur fabrication, permettant des mesures in situ, en phase d'utilisation, sans altérer les performances des structures.

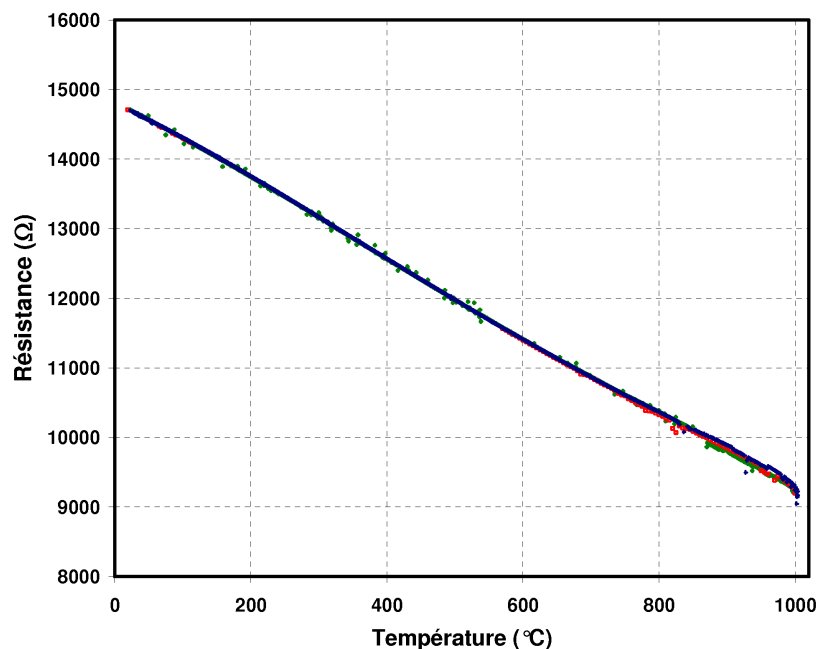


Figure 9. Stabilité du capteur. Trois séries de mesures de température d'un bloc de carbone jusqu'à 1000° C à l'aide d'un capteur XN05/BN

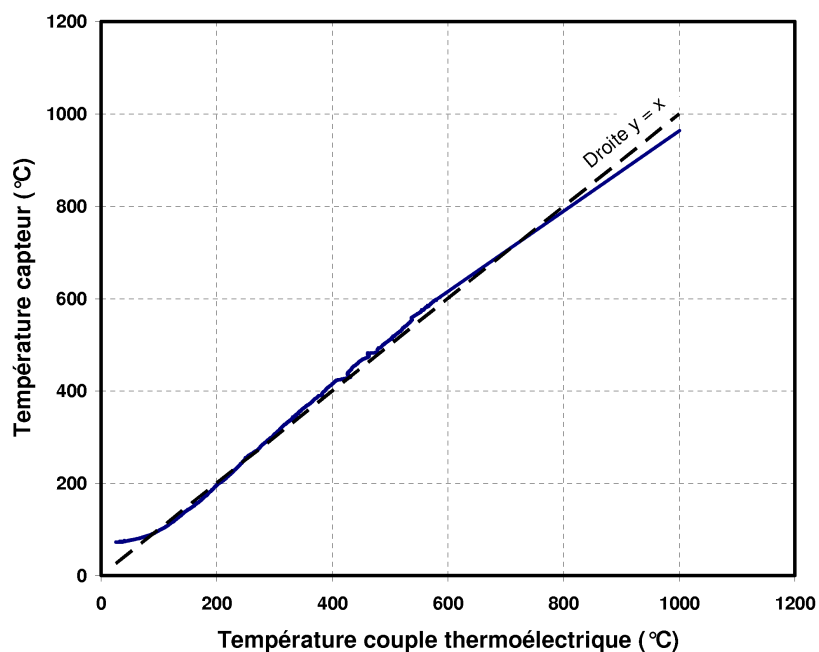


Figure 10. Fidélité du capteur. Mesure de température d'un bloc d'alumine jusqu'à 1000° C à l'aide d'un capteur XN05/SiC/BN (la droite interrompu correspond à une température de capteur égale à celle du couple thermoélectrique)

## REFERENCES

1. J. Rogez and J. Le Coze. Mesure des températures. In *Techniques de l'ingénieur*, volume RC2. 1992. n°R2515.
2. G. Bonnier and H. Ronsin. Thermistances cnt et autres thermomètres à semi-conducteurs. In *Techniques de l'ingénieur*, volume RC3. 1991. n°R2580.
3. C. Sauder. *Relation microstructure/propriétés à haute température dans les fibres et matrices de carbone*. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2001.
4. C. Pradère. *Caractérisation thermique et thermomécanique de fibres de carbone et ceramique à très haute température*. PhD thesis, ENSAM Bordeaux, 2004.
5. F.T. Wallenberger. Inorganic fibres and microfabricated parts by laser assisted chemical vapour deposition (lcvd) : structures and properties. *Ceramics International*, 23, 1997.
6. H. Fedter, W. Grünwald, P. Nolting, C. De la Pietra, and K. Schmid. Thermal radiation sensors, 1986. EP0277724B1.
7. I.P. Kuritnyk. Investigation of new materials for high temperature sensors. *Measurement*, 13(3):169–181, 1994.
8. H. Ikuta, S. Kaku, and M. Kawabayashi. Resistive material and resistive material thin film, 1998. JP10214702 A.
9. M.V. Wolking, D. De Bruyker, E. Peeters, and A. Bell. Resistive thermal sensing, 2005. US20050238080 A1.
10. M. Tadaka. Temperature sensor, 1982. JP57014727 A.
11. H. Tanigawa, K. Ogata, K. Matsumoto, and K. Onaka. Thin film temperature sensor, 1990. JP021777503 A.
12. K. Tsuruga. Thin film temperature sensor, 1990. JP05215616 A.
13. J. Gerblinger and H. Meixner. High temperature sensor made of metal of the platinumium, 1995. US5430428 A.
14. H. Tani, T. Kubota, and K. Miyagawa. Method of manufacturing platinumium temperature sensor, 1993. US5244536 A.
15. T. Yoshioka, H. Deguchi, and T. Komoda. Temperature sensing resistive material, its manufacturing method, and infrared sensor using the same, 2002. JP 2002/008905 A.
16. Y. Bando, Y. Gao, Z. Liu, and D. Golberg. Temperature measuring method using micro temperature sensing element, 2006. JP1640695 A1.
17. W. Thimm and W. Wittenhagen. Temperature sensor based on resistance measuring, and radiant heater provided with a temperature sensor of this type, 2005. WO 2005/052528 A1.
18. Y. Mikky and Y. Ohwaki. Plaque flexible à circuit câblé pour la mesure de température, 2004. ER1418410.
19. C. Pradere, R. Pailler, J.C. Batsale, and J.M. Goyhénèche. Technique pour la mesure de la résistivité électrique de fibres unitaires à très haute température et dispositif expérimental associé. Brevet en cours de dépôt.
20. C. Rohr, J. Boo, and W. Ho. The growth of hexagonal boron nitride thin films on silicon using single source precursor. *Thin Solid Films*, 322:9–13, 1998.

# SONDE D'EXCITATION THERMIQUE PAR CONTACT ET PROCÉDÉ POUR LA FABRICATION ET L'ÉTALONNAGE DE CETTE SONDE

**C. Lorrette<sup>1,2</sup>, R. Paillet<sup>3,2</sup>, J.M. Goyhénèche<sup>4</sup>, J.C. Batsale<sup>5,6</sup>, and R. Huillery<sup>7</sup>**

<sup>1</sup>*Association pour le Développement de l'Enseignement et des Recherches auprès des universitaires, des centres de recherche et des entreprises d'Aquitaine (ADERA),  
Centre Condorcet, 162 rue A. Schweitzer, BP 196, 33608 Pessac*

<sup>2</sup>*Laboratoire des Composites ThermoStructuraux (LCTS),  
UMR 5801 : CNRS-SAFRAN-CEA-UB1, 3, allée de La Boétie, 33600 Pessac*

<sup>3</sup>*Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS),  
Délégation Aquitaine Limousin, BP 105, 33402 Talence Cedex*

<sup>4</sup>*Commissariat à l'Energie Atomique (CEA)  
Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine (CESTA), BP 2, 33114 Le Barp*

<sup>5</sup>*Université Bordeaux 1  
331 cours de la libération, 33405 Talence*

<sup>6</sup>*Laboratoire interétablissements Transferts Ecoulements Fluides et Energétiques (TREFFLE)  
UMR 5808 : CNRS-ENSAM-UB1, Esplanade des Arts et Métiers, 33405 Talence*

<sup>7</sup>*Thermoconcept, Esplanade des Arts et Métiers, Bât 9, 33405 Talence Cedex*

Demande de brevet FR 07153 189 du 12/02/2007

## 1. OBJET

La caractérisation thermique (mesure de conductivité et capacité thermique) met en jeu des dispositifs expérimentaux d'autant plus complexes que l'essai doit être réalisé à haute température. Ainsi, à l'ambiante, plusieurs types de méthodes peuvent être employés pour conduire à des résultats très voisins. Si la mesure doit être réalisée jusqu'à 1000°C, il ne reste plus que 2 à 3 familles de méthodes possible, les appareils commercialisés laissant alors progressivement la place aux installations de laboratoire. Au-delà de 1500°C, les dispositifs expérimentaux sont beaucoup plus rares et développés de manière spécifique. Pour la mesure de conductivité, ils font appel à des systèmes laser onéreux, difficiles à développer et délicats à maintenir. Pour la mesure de capacité, ils font appel à la méthode de calorimétrie à chute, précise mais dont l'utilisation se révèle fastidieuse si la gamme de température est étendue.

L'objectif de ce brevet est de proposer une sonde d'excitation thermique par contact pouvant être utilisée pour la caractérisation thermique jusqu'à haute température. Cette sonde délivre une quantité de chaleur calibrée, sur une étendue géométrique adaptable en fonction de l'application. Elle permet ainsi de solliciter thermiquement un échantillon puis de déduire, via la réponse en température de la sonde ou d'un capteur implanté à proximité, les propriétés thermiques (conductivité, capacité) du milieu.

Enfin, si l'application à la caractérisation thermique est évidente, il est également possible d'envisager des applications à l'étalonnage de capteurs de température, à l'étude des changements de phase, etc.

## 2. ETAT DE L'ART

La mesure de propriétés thermophysiques fait l'objet d'une activité scientifique soutenue, tant l'enjeu de la détermination précise de ces grandeurs est important. Pour répondre à ce besoin, il s'agit soit de définir de nouvelles méthodes de mesures associées à un dispositif expérimental, soit de développer des instruments permettant la réalisation de ces mesures dans des conditions particulières d'environnement (pression, température), pour un type de matériau (solides/liquides/gaz, multiphasiques, homogènes/hétérogènes, isotropes/anisotropes, etc.) ou encore à une échelle de caractérisation donnée. L'invention proposée ici concerne le développement d'un nouveau moyen d'excitation thermique destiné à la caractérisation jusqu'à très haute température.

Pour l'ensemble des méthodes qui existent, la détermination des propriétés thermophysiques nécessite : (i) une perturbation thermique du milieu à caractériser, celle-ci pouvant être stationnaire ou non et (ii) un ou plusieurs moyens de mesure de la réponse en température, ces derniers pouvant être placés au contact ou non du spécimen. La nature de la perturbation thermique permet de différencier ces méthodes. On définit ainsi les méthodes dites sans contact pour lesquelles la perturbation est de type photothermique (par exemple méthode flash avec excitation laser) des méthodes dites par contact pour lesquelles la perturbation est d'origine électrothermique. L'invention concerne la seconde classe de méthode qui nécessite un moyen d'excitation en contact avec l'échantillon. Il s'agit le plus souvent d'une résistance électrique dont le choix de la géométrie conduit à mesurer des propriétés différentes :

- une résistance de géométrie plane carrée ou rectangulaire (méthode du plan chauffant [1, 2]) permettra l'identification de l'effusivité thermique du milieu
- une résistance de géométrie linéaire (méthode du fil chaud [1]) permettra l'identification de la conductivité thermique du milieu,
- une résistance de géométrie discoïdale (méthode du Hot Disk [3]) pourra permettre l'identification de trois paramètres simultanément : la conductivité, la diffusivité et la capacité thermique.

Il existe d'autres types de géométrie (méthode du ruban chaud par exemple), mais celles-ci sont souvent considérées comme des variantes des trois principales déjà énoncées.

A l'origine, ces résistances électriques, que l'on qualifie de sondes par abus de langage, ont été développées pour mesurer la conductivité thermique des liquides [4]. Actuellement, ce type de sonde est utilisé dans de nombreux domaines : mesure de conductivité des milieux poreux ou hétérogènes [5, 6], caractérisation thermique des milieux semi-transparents, détermination de propriétés thermophysiques de matériaux céramiques [1].

Le domaine de température propre à chaque sonde est limité. Si beaucoup fonctionnent entre 20 et 150°C, le choix est d'autant plus restreint que l'on s'écarte de cette plage de température. Cela est dû en partie à la constitution de la sonde qui nécessite d'une part (i) un matériau de résistivité électrique importante, un métal pour la majorité des dispositifs, qui va apporter l'énergie nécessaire par effet Joule et d'autre part (ii) un isolant électrique pour éviter les courts-circuits dans le cas où le milieu à caractériser serait conducteur de l'électricité. Il s'agit donc de trouver un couple matériau résistif - isolant électrique qui soit compatible et qui puisse maintenir son intégrité en température.

Les sondes les plus courantes, disponibles dans le commerce, sont constituées d'une résistance en cuivre qui est isolée électriquement par un polyimide (du kapton) [7, 8]. Pour limiter la perturbation des mesures, les épaisseurs

de ces dernières sont très faibles. Typiquement, elles sont inférieures au millimètre. Leur utilisation permet des caractérisations jusqu'à 150°C, température à partir de laquelle l'isolant fond. La société Hot Disk [9] développe des sondes pouvant supporter des températures supérieures. Celles-ci sont constituées d'un alliage de nickel revêtu de mica pouvant résister jusqu'à 700°C maximum, même si la sonde est à usage unique au-delà de 400°C. Les sondes « hot disk » présentent en outre l'avantage d'apporter une excitation thermique dans le milieu mais également de pouvoir suivre simultanément l'évolution du champ de température par une mesure de résistance électrique, les deux grandeurs étant liées [10, 11].

De multiples inventions récentes concernent le développement de sondes ou autres dispositifs pour la mesure de propriétés thermophysiques. Cette activité significative montre un enjeu technique et économique important. On retiendra par exemple :

- une sonde constituée d'un film d'or revêtu d'un isolant électrique pour la mesure de la transmittivité, de la perméabilité et de la capacité thermique de solides, liquides et gaz [12],
- un dispositif améliorant la précision de mesure de conductivité thermique de films minces [13],
- une sonde de type « fil chaud » pour la mesure de conductivité thermique de films minces [14].

Mais bien d'autres développements de dispositifs de caractérisation, ont donné lieu à des dépôts de brevet ces dernières années [11, 15–19], tandis que le développement de méthodes de mesures à proprement parler demeure à la fois plus rare et moins breveté. Un exemple de brevet portant sur une méthode caractérisation est donné à la référence [20].

Enfin, diverses inventions utilisent la variation de propriétés thermophysiques pour répondre à des besoins industriels de contrôle, surveillance ou encore pilotage d'installations. Ainsi, un brevet [21] propose d'utiliser une sonde à choc thermique (résistance chauffante associée à un thermocouple) pour la surveillance d'un réacteur solide - gaz. Concernant la caractérisation aux températures élevées, peu de dispositifs ont fait l'objet de dépôts de brevets. A notre connaissance, un seul concerne le développement d'un conductivimètre pour la caractérisation de matériaux céramiques [22].

Ainsi, bien que l'idée d'utiliser des résistances chauffantes comme moyen d'excitation ait déjà largement été exploitée, aucune étude ne présente d'essais au-delà de 1400°C (sonde céramique de type fil chaud [1]), ni dans la littérature scientifique ouverte, ni dans les brevets. Dans l'invention présentée ici, on se propose d'utiliser une feuille de graphite judicieusement découpée revêtue d'une céramique isolante stable en température, pour envisager des mesures de propriétés thermophysiques jusqu'à très haute température.

En conclusion, le caractère innovant de l'invention se positionne comme suit :

**la technique d'excitation** qui consiste à faire parcourir un fin substrat de carbone par un courant électrique pour générer, par effet Joule, une source de chaleur. Une mesure de la tension et du courant aux bornes de la sonde permet d'obtenir non seulement la puissance dissipée mais également la température de l'objet. Si la sonde est placée au contact d'un matériau conducteur, alors elle doit être revêtue d'un dépôt isolant électrique. Le choix de la nature du carbone et du dépôt peut permettre de développer une sonde utilisable jusqu'à très haute température (au-delà de 1500°C) ;

**la sonde thermique** réalisée à partir d'un fin substrat de carbone usiné à façon et d'un dépôt isolant électrique ; ici, il est proposé d'utiliser un matériau souple de type *Papyex*<sup>(R)</sup> et un dépôt *BN* ou *SiC/BN*. Mais d'autres types de substrats de carbone et d'autres natures de dépôt peuvent être envisagés, l'utilisation du matériau carbone autorisant des applications à très haute température ;

**le procédé de fabrication** décrit en 5 étapes au paragraphe 3.2 : (i) choix du substrat de carbone, (ii) usinage, (iii) traitement thermique ; (iv) réalisation du dépôt ; (v) traitement thermique de la sonde ;

**Le procédé d'étalonnage** qui consiste à déterminer la fonction mathématique reliant la résistance de la sonde à sa température, dans un four, à partir d'une référence donnée par un couple thermoélectrique ou par tout autre capteur préalablement étalonné.

### 3. DESCRIPTION DE L'INVENTION DE BASE

#### 3.1. Principe de fonctionnement

La sonde d'excitation thermique est constituée par un substrat fin usiné pour former une piste résistive de longueur  $L$  revêtue ou non d'un dépôt permettant une isolation électrique lors l'utilisation au contact d'un matériau conducteur. S'il est nécessaire de connaître la température de la sonde en phase d'utilisation, un étalonnage préalable est indispensable. Dans ce cas, on détermine expérimentalement la fonction  $f_E$  reliant la température  $T_S$  (K) de la sonde à sa résistance électrique  $R_S$  ( $\Omega$ ) :

$$R_S = f_E(T_S) \quad (1)$$

Lors de la phase d'utilisation, on mesure la résistance  $R_S$  de la sonde pour en déduire sa température  $T_S$  via la fonction d'étalonnage  $f_E$ .

En phase d'étalonnage comme en phase d'utilisation, la température de la sonde doit être uniforme sous peine non seulement d'entraîner une variation de la résistance électrique  $R_S$  le long de la piste et finalement de dégrader l'incertitude de mesure, mais de générer une source de chaleur non uniforme.

Lors de l'élaboration de la sonde, des niveaux de température déterminants doivent être pris en compte :

$T_F$  : température d'élaboration du substrat de carbone, fixée par le fabricant et variable suivant les matériaux. En pratique, il est toujours très difficile de connaître avec précision (niveau de température, durée) le traitement thermique qu'a subi un matériau lors de son élaboration, cette information étant confidentielle pour le fabricant. C'est la raison pour laquelle il est toujours préférable de réaliser un traitement thermique du substrat en carbone avant de l'utiliser à haute température

$T_D$  : température atteinte par le substrat lors du dépôt de l'isolant électrique

$T_U$  : température atteinte lors de l'utilisation de la sonde

$T_E$  : température atteinte lors de l'étalonnage de la sonde. Par définition, cette température doit être supérieure à la température d'utilisation :  $T_E > T_U$

Par conséquent,

- pour garantir la stabilité thermochimique du substrat lors du dépôt du revêtement isolant, ce dernier doit être préalablement traité à une température  $T_1$  supérieure à la température de dépôt :  $T_1 > T_D$ ;
- pour garantir la stabilité thermochimique de la sonde, cette dernière doit être traitée à une température  $T_2$  supérieure à la température d'étalonnage :  $T_2 > T_E$ ;
- pour prévenir d'éventuels effets thermomécaniques entre le substrat et le dépôt lors des montées en température, il est souhaitable que la température  $T_1$  soit supérieure à la température  $T_2$  :  $T_1 > T_2$ .

Donc finalement :  $T_1 > T_2 > T_E > T_U$ . Ainsi,

- dans le cas d'une mesure de température au contact d'un matériau isolant électrique, la fabrication d'une sonde consiste simplement à réaliser un traitement thermique du substrat à la fibre à la température  $T_1$ ;
- dans le cas d'une mesure de température au contact d'un matériau conducteur électrique, la fabrication de la sonde consiste tout d'abord à réaliser un traitement thermique du substrat à la température  $T_1$  pour s'assurer de sa stabilité, puis de la revêtir d'un dépôt isolant électrique, et enfin à réaliser un deuxième traitement thermique à la température  $T_2$  afin de garantir la stabilité de la sonde (substrat + dépôt).

### 3.2. Procédé pour la fabrication des sondes

La qualité de la sonde dépend notamment : (i) de sa stabilité thermochimique, (ii) de son isolation électrique dans le cas d'une mesure au sein d'un matériau conducteur, (iii) de l'uniformité du champ de température lors de l'excitation et (iv) de la sensibilité de la résistance électrique du substrat à la température. Ces quatre critères conditionnent le procédé de fabrication.

**3.2.1** - La première étape lors de la fabrication de la sonde consiste à choisir un substrat qui, une fois traité à très haute température, présente à la fois des propriétés mécaniques convenables et une sensibilité importante de sa résistivité électrique à la température. Pour la réalisation de nos sondes, nous avons choisi le papier de carbone *Papyex*<sup>(R)</sup> (produit par la société Carbone Lorraine, épaisseur 230  $\mu m$ , résistivité : para 0,001  $\Omega.cm$  et perp 0,05  $\Omega.cm$ ).

**3.2.2** - La deuxième étape consiste usiner le substrat suivant une géométrie définie par l'utilisation. L'usinage consiste à réaliser une piste continue et résistive qui occupe toute la surface devant être excitée thermiquement. Aux extrémités, deux zones plus étendues permettent de réaliser les connexions électriques. Le choix de l'épaisseur du substrat et de la longueur L de la piste est déterminant puisqu'il fixe la résistance électrique  $R_S$  de la sonde définie par :

$$R_S = \frac{\rho_{ES} L}{S} \quad (2)$$

où  $\rho_{ES}$  ( $\Omega.m$ ) représente la résistivité électrique du substrat et S ( $m^2$ ) la section de la piste.

Plusieurs exemples de substrats sont présentés à la figure 1. Pour les sondes que nous avons choisies de développer, nous avons retenu une géométrie carrée de 50 mm de côté (figures 2). Aux extrémités de la piste, les alimentations électriques sont fixées à l'aide d'une colle carbone [23].

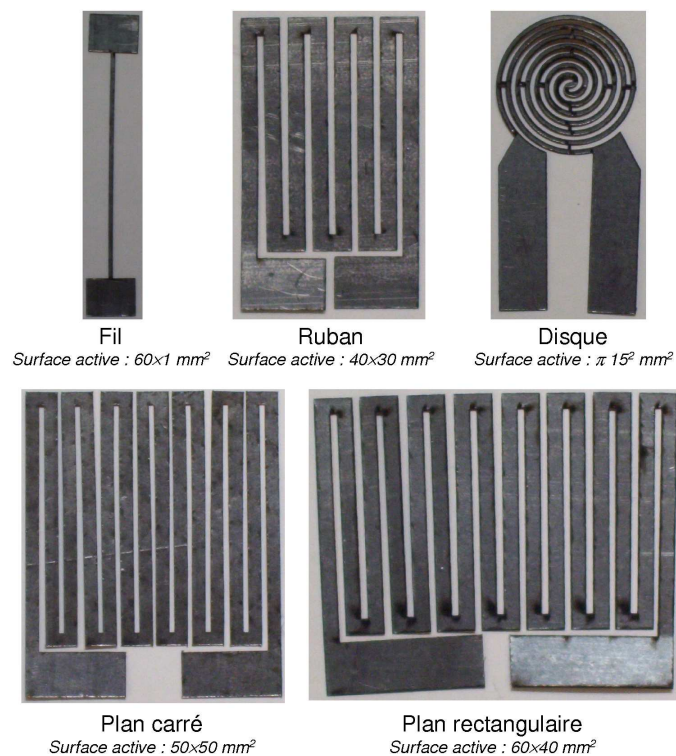


Figure 1. Usinage de substrat de carbone en Papyex destinés à la réalisation de sondes



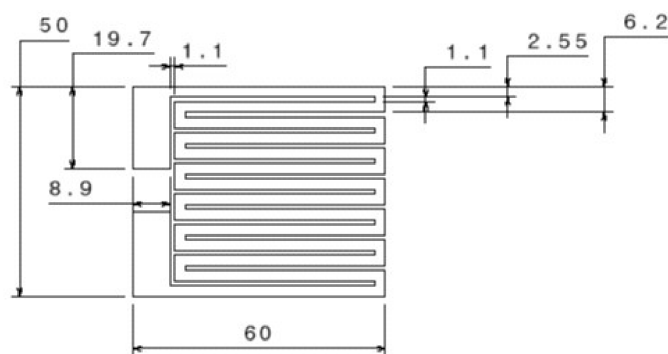


Figure 2. Géométrie retenue pour la fabrication de nos sondes

**3.2.3** - La troisième étape consiste à traiter thermiquement le substrat à la température  $T_1$  pour garantir sa stabilité thermochimique. Nous avons choisi de stabiliser thermiquement le papier de carbone retenu pour la fabrication de nos sondes par un traitement thermique à  $T_1 = 1500^\circ\text{C}$  pendant 10 minutes.

**3.2.4** - La quatrième étape consiste à réaliser un dépôt isolant électrique. Pour la fabrication de nos sondes, nous avons choisi d'utiliser le nitrure de bore ( $BN$ ), bon conducteur thermique, mauvais conducteur électrique et stable à très haute température (fusion à  $2600\text{-}2800^\circ\text{C}$ ). D'autres types de dépôts peuvent également être envisagés, du moment qu'ils satisfont ces deux dernières conditions. S'il demeure souhaitable, le caractère bon conducteur thermique n'est pas indispensable car l'épaisseur des sondes est généralement petite.

Le choix du type de dépôt est également lié à son éventuelle interaction avec le carbone du substrat. Pour pallier cet inconvénient dans le cas d'un dépôt de nitrure de bore, il est souhaitable d'intercaler une couche de carbure de silicium ( $\text{SiC}$ ) [24] entre les deux matériaux afin :

- d'empêcher la diffusion du carbone dans la couche de nitrure de bore. Ce phénomène, irréversible et favorisé par un niveau de température élevé, conduit à dégrader les propriétés d'isolation électrique du dépôt;
- d'empêcher la réaction  $\text{NH}_3 + \text{C} \rightarrow \text{HCN} + \text{CH}_4$  qui dégraderait la fibre lors du dépôt de nitrure de bore [25] par CVD (voir plus loin). Ce dernier point est nécessaire dans le cas du Papyex traité à  $T_1 = 1500^\circ\text{C}$  pendant 10 minutes.

Pour une utilisation jusqu'à quelques centaines de degrés, le dépôt isolant peut être réalisé par simple pulvérisation de nitrure de bore. Effectuée à température ambiante, la mise en oeuvre est alors extrêmement simple. Pour les sondes que nous avons réalisées suivant ce procédé, nous avons utilisé la bombe de nitrure de bore Acheson  $\text{PULVE}^{\text{TM}}$  BND60A commercialisée par la société Tinel.

Pour une utilisation jusqu'à très haute température, le dépôt isolant peut être réalisé à partir d'un précurseur liquide, par la technique de dépôt chimique en phase vapeur (CVD), suivant des conditions de température, pression, débit et durée d'exposition définies en fonction de la nature du revêtement et du dispositif expérimental. Pour le papier de carbone Papyex revêtu de carbure de silicium et de nitrure de bore, les conditions que nous avons identifiées sont les suivantes :

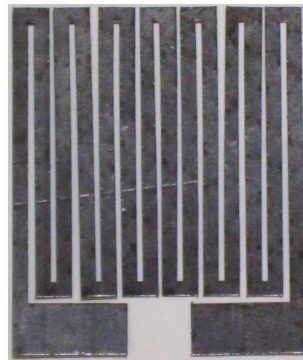
**Dépôt de carbure de silicium**

Précurseur	: tétraméthylsilane ( <i>TMS</i> )
Vecteur	: dihydrogène ( $H_2$ )
Température ( $T_D$ )	: 1050°C
Pression	: 0,1 bar
Débit <i>TMS</i>	: 8 sccm
Débit $H_2$	: 8 sccm
Durée	: 8 minutes (épaisseur 2 $\mu m$ )

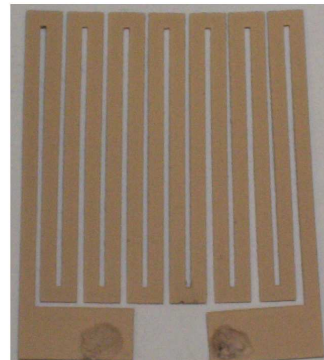
**Dépôt de nitrure de bore**

Précurseur	: tridiméthylaminoborane ( <i>TDMAB</i> )
Réactif	: ammoniac ( $NH_3$ )
Vecteur	: dihydrogène ( $H_2$ )
Température	: 1230°C
Pression	: 0,3 bar
Débit $NH_3$	: 100 sccm
Débit $H_2$	: 15 sccm
Durée	: 30 minutes (épaisseur 500 <i>nm</i> )

A titre d'illustration, la figure 3 présente une sonde revêtue de BN pulvérisé avant et après dépôt, tandis que la figure 4a présente une vue en coupe d'une sonde revêtue d'un dépôt CVD *SiC+BN*. Sur cette dernière illustration, la micrographie montre l'épaisseur du dépôt de *SiC* d'environ 1  $\mu m$ . Enfin, la figure 4b indique la nature des constituants dans les deux différentes couches de *SiC* et de *BN*. On estime ainsi l'épaisseur du revêtement de *BN* (supérieur à 400 nm) et la stoechiométrie des dépôts.



**Substrat de carbone après usinage laser**



**Substrat de carbone revêtu de BN pulvérisé avec fils d'alimentation électrique**

Figure 3. Sondes à revêtement de BN pulvérisé

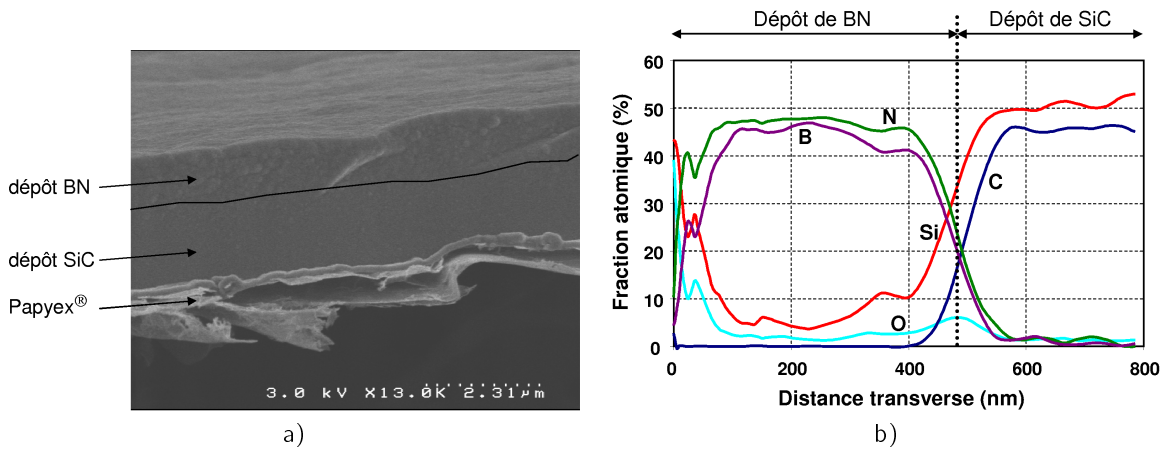


Figure 4. a) Vue en coupe d'une sonde Papyex/SiC/BN (l'interface SiC/BN est indiquée par un trait noir), b) Composition chimique d'une sonde Papyex/SiC/BN au voisinage de l'interface entre le papier de carbone et le dépôt. Profil obtenu par spectrométrie d'électron Auger

**3.2.5** - La cinquième étape dans la fabrication des sondes consiste à traiter thermiquement l'ensemble substrat+dépôt isolant jusqu'à une température supérieure à la température d'étalonnage. Nous avons ainsi stabilisé thermiquement nos capteurs à  $T_2=1300^\circ\text{C}$ .

### 3.3. Procédé pour l'étalonnage des sondes

L'étalonnage des sondes est la dernière étape de leur fabrication. Elle consiste à déterminer la fonction  $f_E$  en chauffant la sonde de manière uniforme et en mesurant simultanément sa température  $T_S$  et sa résistance électrique  $R_S$ . La sonde est disposée entre deux blocs de matériau très conducteur et stable jusqu'à la température  $T_E$ . Un couple thermoélectrique est inséré dans l'un des deux massifs. Le tout est placé dans un four qui permet un chauffage homogène du montage ; la forte conductivité des blocs leur permettant d'être quasiment isothermes. L'opération d'étalonnage consiste alors à relever la résistance électrique  $R_S$  du capteur pour chaque valeur de température  $T_S$  indiquée par le couple thermoélectrique. On en déduit la fonction d'étalonnage  $f_E$  du capteur.

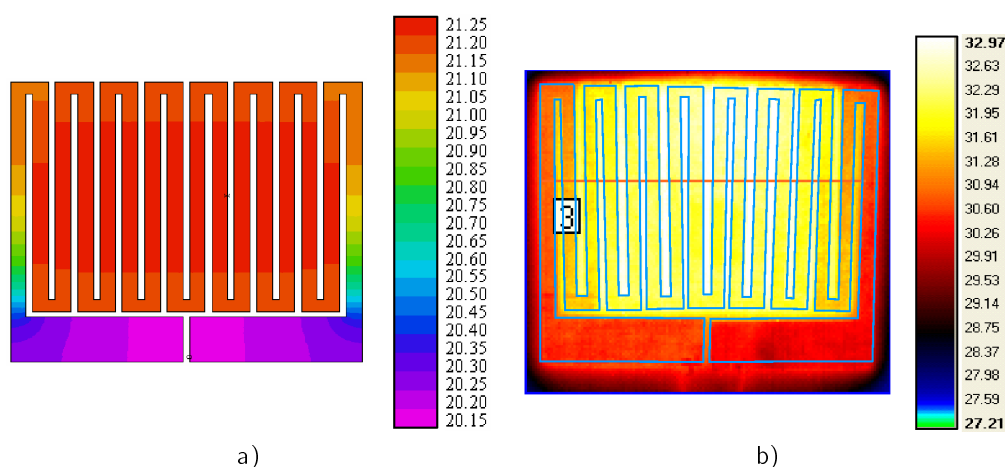


Figure 5. a) Champ de température calculé, b) Champ de température mesuré sur une sonde Papyex/SiC/BN (les bords de la sonde sont indiqués par les traits bleus)

L'étalonnage des sondes présuppose que le champ de température est uniforme sur l'objet, en phase d'utilisation, ce qui garantit une résistance électrique constante le long de la piste. Pour vérifier cela, la figure 5 présente d'une part le calcul (éléments finis) et d'autre part la mesure par caméra infrarouge de ce champ de température sur une sonde posée sur un matériau isolant thermique. On vérifie bien l'uniformité de la température sur la quasi-totalité de la piste.

Enfin, un exemple d'étalonnage de  $20^\circ\text{C}$  à  $1000^\circ\text{C}$  est présenté à la figure 6.

## 4. DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ASSOCIÉ À LA FABRICATION DES SONDES À REVÊTEMENT CVD

### 4.1. Principe de fonctionnement

Le dispositif expérimental est présenté à la figure 7.

Le traitement thermique des substrats et des sondes constituées (sondes+dépôts) est réalisé en chauffant le spécimen par effet Joule, tout en contrôlant simultanément sa température à l'aide d'un pyromètre bichromatique. Le dépôt de carbure de silicium est réalisé par la technique de dépôt chimique en phase vapeur. Pour cela, le  $TMS$ , précurseur liquide retenu, est vaporisé à température ambiante puis entraîné jusqu'à l'enceinte de dépôt sous atmosphère contrôlée de  $H_2$ . La stoechiométrie du  $SiC$  déposé est pilotée par les débits de  $TMS$  et  $H_2$ . Le chauffage du substrat est réalisé par effet Joule.

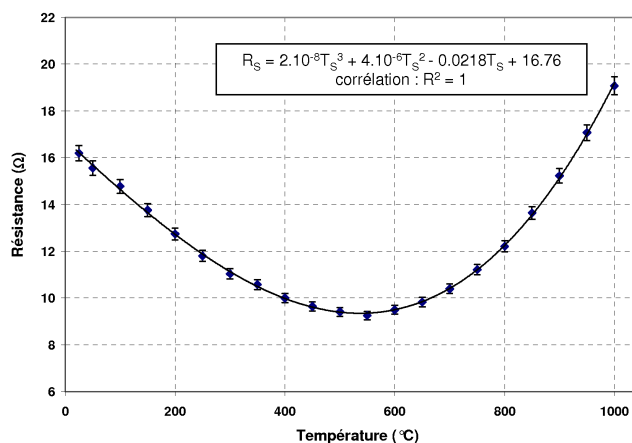


Figure 6. Courbe d'étalonnage à moyenne température d'une sonde Papyex/SiC/BN (dépôt pulvérisé)

Le dépôt de nitrure de bore est réalisé par la technique de dépôt chimique en phase vapeur. Pour cela, le *TDMAB*, précurseur liquide retenu, est vaporisé à  $35^{\circ}\text{C}$  puis entraîné par  $\text{H}_2$  jusqu'à l'enceinte de dépôt dans laquelle il est mélangé à  $\text{NH}_3$ . La présence de ce dernier est nécessaire pour assurer la stoechiométrie du nitrure de bore déposé [26]. Comme précédemment, le chauffage par effet Joule garantit un dépôt uniforme sur toute la surface de la sonde.

#### 4.2. Description détaillée du montage

Pièce	Fonction
1	<i>Substrat.</i>
2	<i>Connexions électriques.</i> Permettent le chauffage du substrat par effet Joule
3	<i>Plaque inférieure enceinte.</i> Les éléments internes du montage sont fixés sur la plaque inférieure à travers laquelle sont réalisées les alimentations électrique et gazeuse via des passages étanches.
4	<i>Supports sonde.</i> La sonde est maintenue horizontalement sur deux tiges en alumine.
5	<i>Capot supérieur enceinte.</i> Le capot supérieur est fixé sur la plaque inférieure pour refermer l'enceinte. Il comporte une double enveloppe où circule de l'eau de refroidissement. Un hublot situé en partie haute permet alors l'observation et la visée pyrométrique.
6	<i>Tuyau arrivée gaz.</i> Le gaz pénètre dans l'enceinte par le tuyau d'arrivée, en surplomb de l'échantillon afin de favoriser le dépôt.
7	<i>Orifice extraction gaz.</i> Le gaz est évacué par l'orifice d'extraction situé en contrebas de l'échantillon afin de favoriser le dépôt.
8	<i>Hublot visée pyrométrique.</i> Un hublot permet d'observer le substrat pendant le dépôt et de réaliser la mesure de température à l'aide d'un pyromètre bichromatique.
(NR)	<i>Pompe à vide secondaire.</i> La pompe à vide secondaire est utilisée lors du traitement thermique et de l'étalonnage du capteur. Au cours de ces opérations, ce dernier est placé sous vide secondaire (pression de $10^{-5}$ à $10^{-8}$ mbar) pour éviter son oxydation.
(NR)	<i>Pyromètre optique.</i> La température de la sonde est mesurée à l'aide d'un pyromètre optique bichromatique qui vise sa surface à travers le hublot.
(NR)	<i>Alimentation électrique.</i> Des passages étanches permettent l'alimentation électrique du spécimen destinée au chauffage par effet Joule.

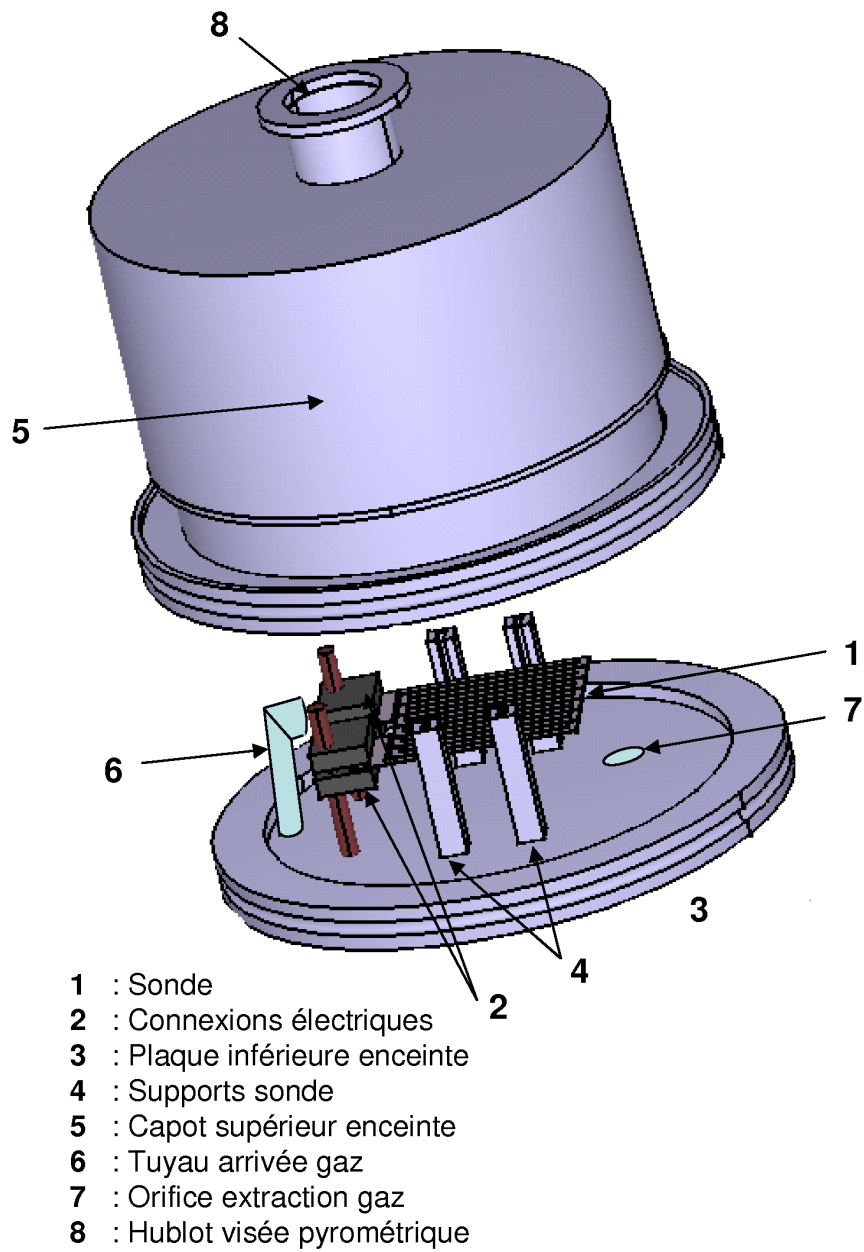


Figure 7. Dispositif expérimental pour la fabrication des sondes à revêtement CVD

(NR)	<i>Alimentation en gaz.</i> A l'extérieur de l'enceinte, l'alimentation gaz possède deux entrées. Entrée 1 : Si le dispositif fonctionne en dépôt de <i>SiC</i> , alors alimentation en <i>TMS</i> . Si le dispositif fonctionne en dépôt de <i>BN</i> , alors alimentation en <i>TDMBA</i> entraîné par <i>H<sub>2</sub></i> . Si le dispositif est en configuration traitement thermique, alors l'entrée est obturée. Entrée 2 : Si le dispositif fonctionne en dépôt de <i>SiC</i> , alors alimentation en <i>H<sub>2</sub></i> . Si le dispositif fonctionne en dépôt de <i>BN</i> , alimentation en <i>NH<sub>3</sub></i> . Si le dispositif est en configuration traitement thermique, alors l'entrée est obturée.
(NR)	<i>Evacuation des gaz.</i> Si le dispositif fonctionne en dépôt, alors l'évacuation est réalisée à travers une pompe à vide primaire. Si le dispositif est en configuration traitement thermique, alors l'évacuation est réalisée à travers une pompe à vide secondaire puis une pompe à vide primaire.

(NR): Non représenté sur la figure 7.

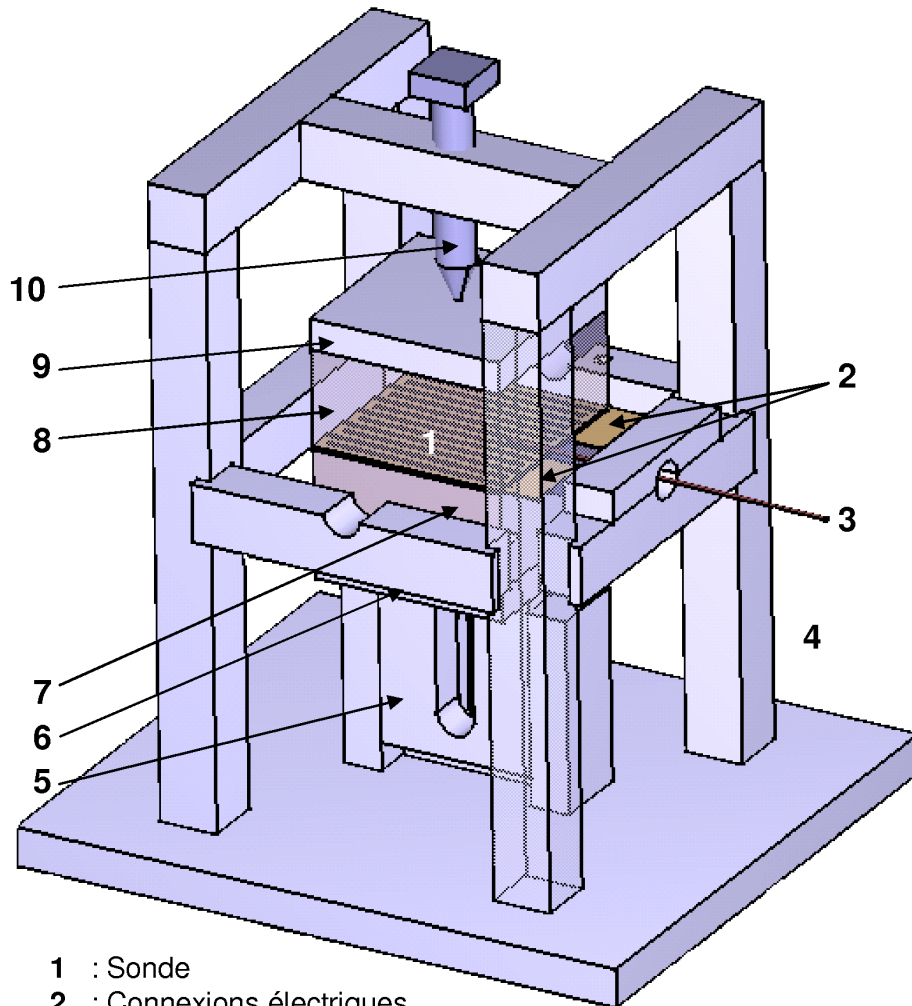
## 5. DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ASSOCIÉ À L'ÉTALONNAGE DES SONDÉS

### 5.1. Principe de fonctionnement

Le dispositif expérimental est présenté à la figure 8. Sur ce montage, la sonde est maintenue entre deux blocs de carbone. L'ensemble, positionné sur une structure également en carbone, est disposé à l'intérieur d'un four, sous vide secondaire (pression de  $10^{-5}$  à  $10^{-8}$  mbar) ou sous balayage de gaz inerte. Un couple thermoélectrique mesure la température du bloc de carbone supérieur. Ce dernier étant bon conducteur (plusieurs dizaines de  $W.m^{-1}.K^{-1}$ ), sa température est uniforme et peu différente de celle du capteur. L'opération d'étalonnage consiste à chauffer progressivement le spécimen (rampe de température) tout en mesurant simultanément sa température (couple thermoélectrique) et sa résistance électrique.

### 5.2. Description détaillée du montage

Pièce	Fonction
1	<i>Sonde.</i>
2	<i>Connexions électriques.</i> L'alimentation électrique de la sonde est réalisée sur deux pattes de connexions dont la dimension, grande par rapport à celle de la piste résistive, garantit une résistance électrique faible et, par conséquent, un échauffement réduit lors de l'expérience.
3	<i>Thermocouple.</i> Un couple thermoélectrique gainé est inséré entre les deux pistes centrales de la sonde. Sa zone sensible est située au milieu de la sonde.
4	<i>Support carbone.</i> Le dispositif expérimental est structuré par un support en carbone sur lequel sont fixés les différents éléments.
5	<i>Support inférieur.</i> Un support inférieur en carbone permet d'ajuster le positionnement vertical des blocs conducteurs de sorte que leur interface coïncide avec la position de la sonde.
6	<i>Plaque inférieure.</i> Une plaque en carbone assure un maintien uniforme du bloc conducteur inférieur.
7	<i>Bloc conducteur inférieur.</i> Massif de carbone qui permet une bonne homogénéité de température sur toute la surface de la sonde.
8	<i>Bloc conducteur supérieur.</i> Massif de carbone qui permet une bonne homogénéité de température sur toute la surface de la sonde.
9	<i>Plaque supérieure.</i> Une plaque en carbone assure un maintien uniforme du bloc conducteur supérieur.
10	<i>Maintien supérieur.</i> Une vis impose une légère pression à l'empilement de pièces afin de maintenir l'ensemble en place au cours de l'essai.



- 1 : Sonde
- 2 : Connexions électriques
- 3 : Thermocouple
- 4 : Support carbone
- 5 : Support inférieur
- 6 : Plaque inférieure
- 7 : Bloc conducteur inférieur
- 8 : Bloc conducteur supérieur
- 9 : Plaque supérieure
- 10 : Maintien supérieur

Figure 8. Dispositif expérimental pour l'étalonnage des sondes

## 6. EXEMPLES D'UTILISATION DE LA SONDE

La sonde a été utilisée pour caractériser les propriétés thermiques (conductivité, capacité) de plusieurs types de matériaux, conducteurs ou isolants, isotropes ou anisotropes, céramiques ou composites. L'expérience réalisée est du type plan chaud [27]. Elle consiste à exciter thermiquement un échantillon parallélépipédique de section carrée (50 mm de côté) et d'épaisseur constante (de l'ordre de 10 mm) tout en mesurant simultanément sa température en deux points (figure 9). L'ensemble est confiné dans un isolant thermique pour maîtriser le caractère monodimensionnel de l'essai.

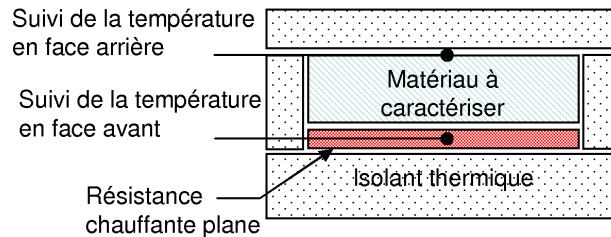


Figure 9. Exemple d'utilisation de la sonde pour la caractérisation thermique des matériaux solides - principe de mesure.

Pour la série d'expériences à température ambiante, la sonde utilisée est de type Papyex/BN (dépôt pulvérisé), géométriquement identique à celle représentée à la figure 2, et de résistance électrique 15.53  $\Omega$ . Les résultats obtenus sont en accord avec les valeurs annoncées par les fabricants (voir tableau ci-dessous).

Nous remarquons que l'expérience permet de déterminer non seulement la conductivité mais également la capacité thermique du matériau, alors que les techniques usuelles conduisent le plus souvent à l'une ou l'autre de ces propriétés. Cet avantage est lié à la nature même de l'excitation thermique délivrée par la sonde qui demeure parfaitement maîtrisée tant du point de vue intensité que du point de vue dynamique.

Enfin, dans le cas du matériau composite à fibres de carbone et matrice de résine phénolique, la conductivité peut être déterminée parallèlement et perpendiculairement au plan des fibres en réalisant deux expériences successives. Cette aptitude à la caractérisation des matériaux anisotropes est également un point fort de la technique développée.

Tableau 1. Exemple d'utilisation de la sonde pour la caractérisation thermique des matériaux solides - Résultats à température ambiante.

	Fabricant	Nature	Ce travail		Fabricant	
			$\rho C_p$ $10^3 J.m^{-3}.K^{-1}$	$\lambda$ $W.m^{-1}.K^{-1}$	Source	$\lambda$ $W.m^{-1}.K^{-1}$
Ech1	Céraquitaine	mullite	2379	3.58	[28]	3.53
Jargal M	St Gobain	alumine	3644	5.23	[29]	5.50
ER 1195	St Gobain	zircone	2748	4.90	[29]	4.77
EDM3	Poco	graphite	1553	102.9	[30]	104
Aiguitex	Safran	préforme	630	para 0.612 perp 0.284	[31]	0.60 0.38
C/R	CEA	composite 2D carbone/résine	1629	para 1.20 perp 0.91	- -	- -

Les résultats obtenus à moyenne température avec une sonde de type Papyex/SiC/BN (dépôt CVD) sur le matériau Jargal M (Saint-Gobain) sont également en accord avec ceux annoncés par le fabricant (figure 10). L'évolution de la conductivité thermique est bien reproduite jusqu'à 1000°C.



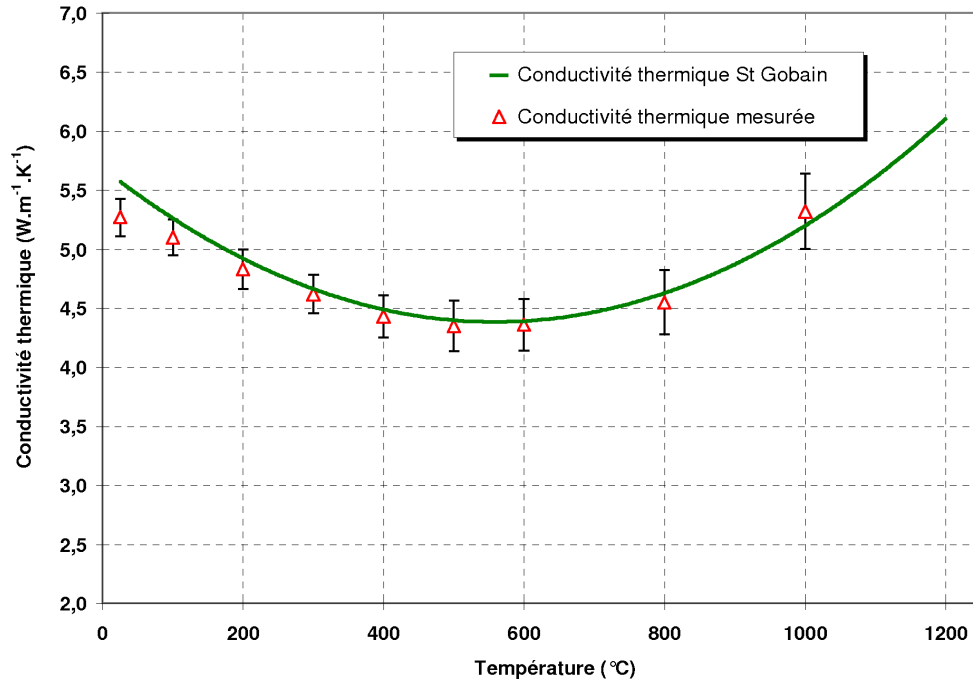


Figure 10. Exemple d'utilisation de la sonde pour la caractérisation thermique du matériau Jargal M (St Gobain - résultats à moyenne température)

## 7. APPLICATIONS INDUSTRIELLES

La première application de la sonde développée concerne la caractérisation thermique des matériaux solides jusqu'à très haute température. Aujourd'hui, une seule société commercialise ce type de sondes pour des mesures de conductivité et capacité thermiques jusqu'à 700°C ; mais au-delà de 400°C, la sonde, en Mica, est à usage unique. L'invention proposée permet d'envisager des mesures identiques jusqu'à des températures dépassant les 1500°C, avec une sonde réutilisable.

Les techniques de caractérisation liées à l'utilisation de sondes sous forme de ruban, plan ou disque chauffant constituent des alternatives pertinentes aux méthodes laser le plus souvent proposées à haute température. La réduction des coûts d'installation, de maintenance et de formation du personnel, ainsi que la réduction des risques liés à la mise en œuvre des lasers favorisent logiquement l'expansion de ces méthodes peu répandues en France.

Les principaux secteurs concernés sont bien évidemment ceux de l'aéronautique et du spatial, pour lesquels le domaine des hautes températures est largement exploré. Mais d'autres champs d'activités comme les transports, l'industrie chimique, la production d'énergie ou encore la sidérurgie sont également intéressés par le domaine des moyennes températures (jusqu'à 1000°C) pour lesquelles la complexité des techniques de caractérisation actuelles confinent leur emploi aux laboratoires publics ou aux grands organismes de recherche.

Enfin, l'utilisation de la sonde thermique n'est pas limitée à la caractérisation thermique. Elle peut également être utilisée comme moyen d'excitation calibrée dans tous les systèmes où il est nécessaire d'apporter une source de chaleur maîtrisée. On peut penser aux installations qui mettent en jeu des changements de phase ou plus largement des phénomènes physicochimiques complexes. A l'heure de la miniaturisation, la sonde thermique peut également intéresser des systèmes de chauffage embarqués ou encore intégrés au cœur des matériaux, composites par exemple.

## REFERENCES

1. X. Zhang. *Méetrologie thermique par méthode quasi-instationnaire : modélisation, identification et application à la caractérisation de solides*. PhD thesis, INPL, 1993.
2. B. Ladevie. *Mise au point de dispositif de caractérisation thermophysique de matériaux isolants solides ou pâteux. Extension aux fluides cisailés*. PhD thesis, ENSAM Bordeaux, 1998.
3. S.E. Gustafsson. Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials. *Review of Scientific Instruments*, 62:797, 1991.
4. E.F.M. Van Der Held and F.G. Van Drunen. A method of measuring the thermal conductivity of liquids. *Physika*, 15:865, 1949.
5. A. Dagiovanni, X.X. Zhang, and C. Moyne. A model of spherical hot probe for the determination of the thermal properties of a granular material. In *12th European Conference on Thermophysical Properties*, pages 24–27, Vienna, 1990.
6. W.K.P. Van Loon. A new model for the non-steady-state probe method to measure thermal properties of porous media. *International Journal of Heat Transfert*, 32:1473, 1989.
7. Y. Jannot and P. Meukam. Simplified estimation method for the determination of the thermal effusivity and thermal conductivity using a low cost hot strip. *Measurement Science and Technology*, 15:1932–1938, 2004.
8. <http://www.neotim.fr>.
9. <http://www.hot-disk.com>.
10. S.E. Gustafsson and E. Karawacki. Thermal conductivity, thermal diffusivity and specific heat of thin samples from transient measurements with hot disk sensor. *Review of Scientific Instruments*, 65(12), 1994.
11. S.E. Gustafsson. Method of measuring thermal properties of materials with direction dependant properties, 2003. WO 00/7033.
12. A. Maezono. Thermal physical property measuring method and device therefor, 2000. JP2000028558.
13. R. Kato. Device and method for measuring thermal property, 2002. JP2002303597.
14. S. Okuda. Probe for measuring thermophysical property value of thin film, 1993. JP5188021.
15. T.R. Amer. Device and method for measuring thermal conductivity of thin films, 2001. US6331075B1.
16. S.E. Gustafsson. A device for measuring thermal properties of a sample of a substance, 1989. WO 89/08837.
17. N. Taketoshi. Method for measuring thermophysical properties of a thin film and apparatus therefor, 2005. US20050024361.
18. W. Poesnecker. Material sample's specific heat capacity, temperature conductivity and/or heat conductivity determining device has material sample contacted with temperature sensor in distance from middle axis of material sample, 2006. DE102004051875.
19. S. Jounten. Thermal conductivity measuring device, 1994. JP60094657.
20. E. Piorkowska, A. Galeski, and M. Kryszewski. Method of determination of thermal conduction coefficient and heat capacity of materials and apparatus for measurements of thermal conduction coefficient and heat capacity of material, 1986. 4630938.
21. J.L. El Romanger. Procédé d'utilisation d'une sonde à choc thermique, sonde et application du procédé, 1988. 0307299 A2.
22. A. Babou. High temperature thermal conductivity measuring appts. for ceramic materials, 1997. FR2745636.

23. C. Pradère, R. Pailler, J.M. Goyhénèche, and J.C. Batsale. Technique pour la mesure de la résistivité électrique de fibres unitaires à très haute température et dispositif expérimental associé, 2006. 0651469.
24. C. Lorrette, R. Pailler, J.M. Goyhénèche, and J.C. Batsale. Technique et capteur pour la mesure de température par contact, et procédé pour la fabrication et l'étalonnage de ces capteurs, 2006. Brevet en cours de dépôt.
25. O. Dugne. On a thermodynamic approach to the chemical phenomena involved in the formation of bn interphase by cvd/cvi from a  $bf_3 - nh_3$  precursor. *Journal of Alloys and Compounds*, 1991.
26. C. Roth. The growth of hexagonal boron nitride thin films on silicon single source precursor. *Thin Solid Films*, 322:9–13, 1998.
27. C. Lorrette. *Outils de caractérisation thermophysique et modèles numériques pour les composites thermostructuraux à haute température*. PhD thesis, Université de Bordeaux1, 2007.
28. Céraqitaine. communication personnel, 2006.
29. St Gobain CREE. Sintered and electrofused products for the glass industry, 2004.
30. R.G. Sheppard, D. Morgan, D.M. Mathes, and D.J. Bray. Properties and characteristics of graphite for the edm industry, 2002. Poco Graphite Inc.
31. D. Demange and J.C. Laizet. Mesure de la conductivité thermique des préformes sèches et densifiées. Technical report, ONERA, 2000. n°RT 1/03519 DMSC.

## 4.4 Conclusion du chapitre

Les travaux formalisés dans ce chapitre ont concerné le développement de deux nouveaux instruments de mesure thermique par contact destinés à l'obtention de propriétés thermophysiques des milieux solides hétérogènes à haute température. Tout d'abord, l'utilisation d'une fibre de carbone pour suivre la température via une mesure de sa résistivité électrique a été démontrée. La confection de plans chauffants en graphite souple, capable de générer par effet joule, une source de chaleur stable et suffisamment puissante pour perturber thermiquement des échantillons de taille respectable, a ensuite été réalisée.

La principale difficulté résidait dans l'isolation électrique des instruments. Celle-ci a été surmontée grâce à la réalisation de revêtements de nitrure de bore hexagonal. Pour une utilisation jusqu'à quelques centaines de degrés ( $< 600^\circ\text{C}$ ), il a été montré qu'un dépôt grossier de  $h - BN$ , obtenu par simple pulvérisation suffit à satisfaire ce besoin. Lorsqu'il s'agit de mesures à plus haute température, le revêtement isolant doit être élaboré par un procédé de dépôt CVD. Dans les conditions les plus sévères d'utilisation ( $T > 1000^\circ\text{C}$ ), la présence d'un film intermédiaire de carbure de silicium s'avère nécessaire pour pallier toute interaction entre la céramique isolante et le substrat.

Actuellement, l'usage des capteurs développés a rendu possible la mesure de température au contact de milieux conducteurs électriques, dans un four résistif à parois chaudes sous atmosphère non oxydante, jusqu'à  $1000^\circ\text{C}$ . L'étalonnage de ces derniers jusqu'à  $1500^\circ\text{C}$ , nous laisse entrevoir une utilisation future jusqu'à un niveau de température au moins égal à ce seuil.

Parallèlement à cela, l'application à la caractérisation d'une alumine par la méthode présentée chapitre 3, a permis d'attester la faisabilité d'une mesure de la conductivité thermique jusqu'à  $1000^\circ\text{C}$  à l'aide des plans chauffants développés. Là aussi, rien ne s'oppose en théorie à une utilisation à un niveau de température supérieur. Ce dernier exemple va être repris au chapitre suivant de façon détaillée.

A ce stade du travail, tous les éléments sont maintenant réunis pour permettre la caractérisation thermique de divers matériaux à haute température. Une méthode adaptée est en place, ce chapitre apporte les instruments appropriés au dispositif de mesure pressenti. La prochaine étape doit concerner la réalisation des essais.

Trois configurations expérimentales sont préconisées selon la nature du milieu à étudier. Celles-ci sont illustrées sur les figures 4.6 et 4.7 par une représentation schématique. Le tableau 4.3 identifie les moyens de suivi des températures envisageables en faces avant et arrière selon le niveau de température escompté pour la mesure thermique.

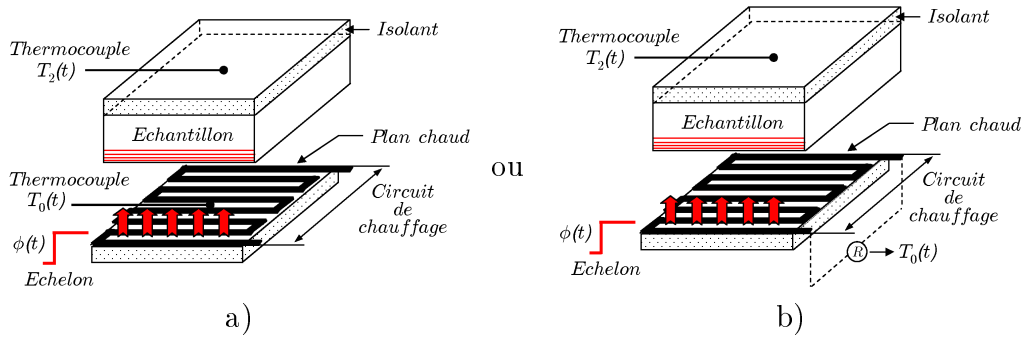


FIG. 4.6 – Configurations de mesure préconisées pour la caractérisation des milieux homogènes. L’excitation est de type plan chaud, le suivi de la température peut être ponctuel (a) ou surfacique (b) en face avant, ponctuel en face arrière.

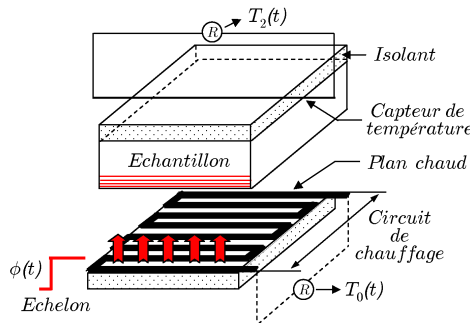


FIG. 4.7 – Configuration de mesure préconisée pour la caractérisation des milieux hétérogènes. L’excitation est de type plan chaud, le suivi de la température est surfacique en face avant, linéique en face arrière.

TAB. 4.3 – Moyens de suivi des températures accessibles en faces avant et arrière.

	Grandeur mesurée	Plage de température	$T_0(t)$	$T_2(t)$
Thermocouple	ddp (mV)	20 à 1200°C	×	×
Élément chauffant	R ( $\Omega$ )	20 jusqu’à H.T.	×	-
Monofilament	R ( $\Omega$ )	20 jusqu’à H.T.	-	×

# Chapitre 5

## Applications

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Conductivité thermique d'un composite à température ambiante . . . . .</b>	<b>167</b>
5.1.1	Données expérimentales . . . . .	167
5.1.2	Prévision de la conductivité thermique effective . . . . .	169
5.1.3	Mesure des propriétés thermiques par la méthode du plan chaud à deux températures . . . . .	175
5.1.4	Confrontation calcul/mesure . . . . .	182
<b>5.2</b>	<b>Caractérisation thermique d'une céramique en température . . . . .</b>	<b>184</b>
5.2.1	Dispositif expérimental . . . . .	184
5.2.2	Etalonnage du plan chauffant . . . . .	185
5.2.3	Résultats et discussion . . . . .	186

---



Ce dernier chapitre résulte des développements expérimentaux et théoriques accomplis dans les parties précédentes. A travers deux exemples d'application, il se consacre à l'obtention de propriétés thermophysiques de milieux réels.

La première application concerne la détermination de la conductivité thermique effective d'un composite carbone/résine à température ambiante. Cette phase se déroule en trois étapes. Tout d'abord, les modèles de prévision sont ici mis à contribution. Des mesures sont ensuite réalisées par la méthode du plan chaud à deux températures en respectant le schéma établi au chapitre 3. A l'issue, une confrontation des résultats mesurés et calculés est entreprise.

La seconde application concerne la caractérisation thermique d'une céramique isotrope en température. Celle-ci tient lieu de validation expérimentale des outils et de la méthode mise au point. Le protocole de mesure emprunté ainsi que les hypothèses émises sont ici largement décrits.

Pour ces deux applications, une évaluation des incertitudes sur les résultats obtenus sera effectuée.

## 5.1 Conductivité thermique d'un composite à température ambiante

Cette première application concerne un composite stratifié 2D élaboré par le CEA Le Ripault, pour lequel des données expérimentales sont disponibles sur ses caractéristiques morphologiques et sur les propriétés thermophysiques de ses constituants.

### 5.1.1 Données expérimentales

#### Description et caractéristiques morphologiques du composite

Le composite étudié est élaboré à partir de fibres de carbone ex-rayonne C1 à texture quasi-isotrope (diamètre moyen  $10 \mu\text{m}$ , cf figure 5.1a), tissées selon une architecture satin de 8 à décochement de 3. Les plis sont empilés les uns au dessus des autres sans désorientation et noyés dans une résine phénolique RA101 contenant 20 % en masse de noirs de carbone. Ces charges, de géométrie sphérique, sont contenues uniquement dans la matrice inter-plies (pas de charges dans les fils). La figure 5.1b permet d'apprécier l'architecture du composite ainsi que les sections de fils (720 fibres par fils).



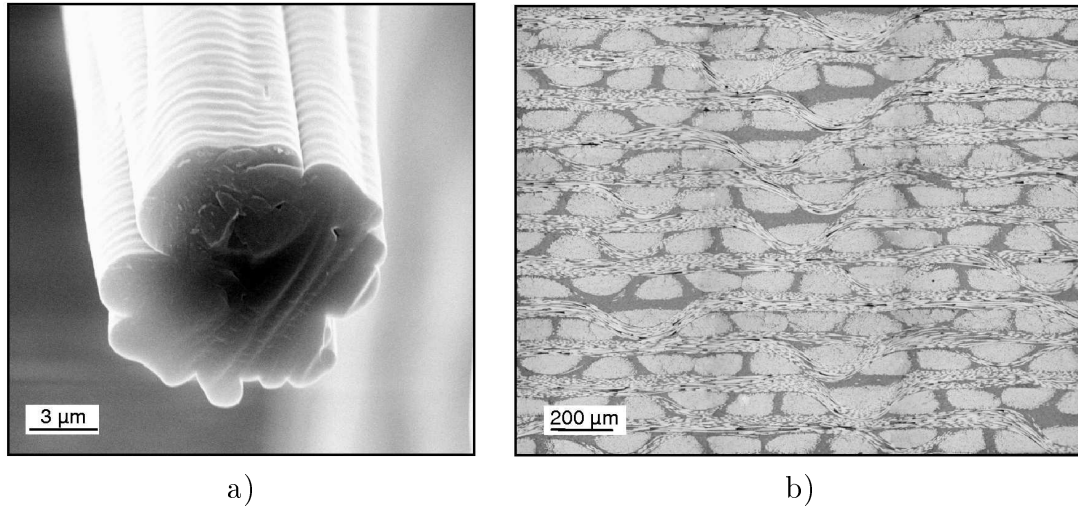


FIG. 5.1 – a) Fibre de carbone ex-rayonne C1 (photo MEB), b) Vue en coupe de l'architecture satin 8-5 du composite considéré : fils de chaîne observés suivant leur section, les fils de trame sont dans la direction perpendiculaire.

Le taux volumique de fibres dans le composite est de 45 %, sa densité est de 1,46 (données CEA). Nous considérerons le matériau non poreux ( $\varepsilon < 0,02$ ).

### Propriétés thermophysiques des constituants

La masse volumique et la capacité thermique des constituants fibres, résine et charges ont été mesurées au LCTS respectivement par pycnomètre à hélium (appareil commercial : Accupycl330, Micromeritics) avec une incertitude de l'ordre de 3 % et par calorimétrie différentielle à balayage (appareil commercial : DSC, Setaram) avec une incertitude de l'ordre de 10 %. La conductivité thermique de la matrice est déduite de la mesure de diffusivité thermique réalisée par méthode flash sur un échantillon massif avec une incertitude de 10 % [116]. La conductivité thermique des charges provient également de la mesure de diffusivité thermique par méthode flash réalisée sur des échantillons de matrice chargée à différentes concentrations<sup>1</sup>.

TAB. 5.1 – Propriétés thermophysiques des constituants.

	Masse volumique $kg.m^{-3}$	Capacité thermique $J.kg^{-1}.K^{-1}$	Conductivité thermique $W.m^{-1}.K^{-1}$
fibres C1	1800	750	1,9 (sens L) 1,6 (sens T)
Résine	1300	1050	0,40
Charges	2200	600	100

<sup>1</sup>c'est un ordre de grandeur, nous vérifierons par la suite que cette donnée est peu influente

Enfin, les conductivités thermiques des fibres sont obtenues à partir de la mesure de la diffusivité thermique réalisée par microscopie photothermique à température ambiante [117]. Etant donné les difficultés expérimentales que soulève la technique, cette donnée est estimée avec une incertitude de 20 %. Toutes ces valeurs sont rassemblées dans le tableau 5.1.

## 5.1.2 Prédiction de la conductivité thermique effective

### Conductivité thermique effective des fils

En supposant les fibres rectilignes et parfaitement alignées, la conductivité thermique longitudinale effective des fils est calculée simplement par le modèle parallèle :

$$\lambda_{F,L} = \alpha_{f,F} \lambda_{f,L} + \alpha_{r,F} \lambda_r \quad (5.1)$$

où  $\alpha_{f,F}$  et  $\alpha_{r,F}$  représentent respectivement les fractions volumiques de fibres et de résine dans les fils. Ces valeurs sont renseignées par une analyse d'images à partir d'observations de section de fils.

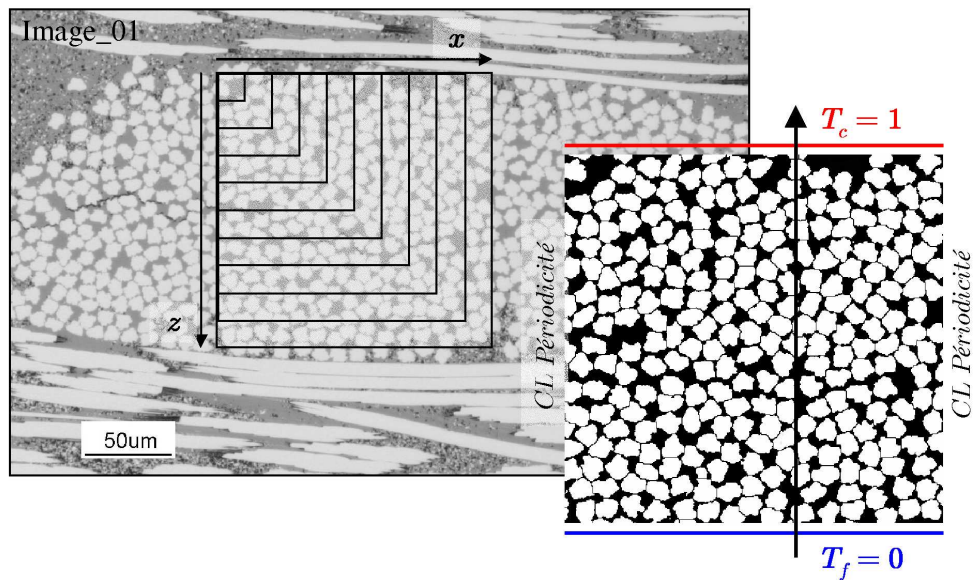
La conductivité thermique transverse effective des fils est déterminée numériquement à l'aide du modèle de premier changement d'échelle (méthode FFCM). La procédure détaillée chapitre 2 est ici rigoureusement appliquée sur des clichés obtenus en microscopie optique. La recherche des dimensions du V.E.R. est effectuée sur plusieurs images de fils observés en coupe (cf FIG. 5.2) ; la résolution optique des images ainsi que la convergence du maillage par éléments finis sont optimisées pour ce cas précis. Le tableau 5.2 rassemble les paramètres utilisés pour ce calcul. Notons ici que les conductivités thermiques calculées selon les axes x et z des images sont égales. Les résultats de la modélisation sont présentés dans le tableau 5.3.

TAB. 5.2 – Paramètres pour le calcul de la conductivité effective transverse des fils.

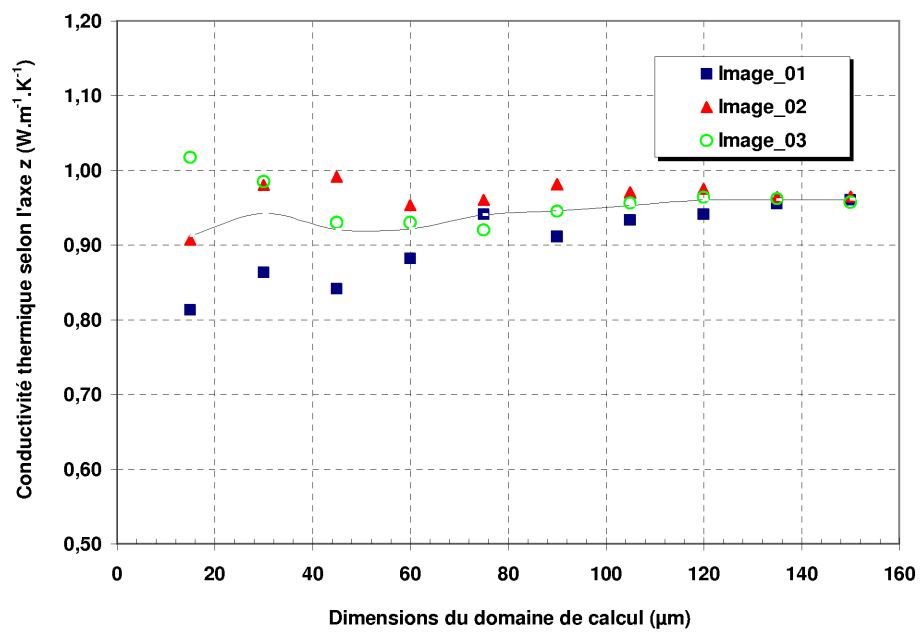
Taille du V.E.R.	Résolution optique	Incertitude numérique
$\mu\text{m}^2$	$\mu\text{m}/\text{pixel}$	sans unité
150×150	0,22 (G×10)	1.10 <sup>-5</sup>

TAB. 5.3 – Conductivités thermiques et fraction volumique identifiées.

	$\lambda_{F,L}$ (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	$\lambda_{F,T}$ (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	$\alpha_{f,F}$ (%)
Moyenne	1,39	0,96	65,75
Ecart type relatif (%)	-	± 0,016	± 2,10



a) Procédure pour la détermination des dimensions du V.E.R.



b) Evolution de la conductivité thermique en fonction de la taille du domaine de calcul considéré.

FIG. 5.2 – Détermination de la conductivité thermique effective transverse des fils.

### Conductivité thermique effective de la matrice chargée

La fraction volumique de charge dans la matrice étant relativement faible (20 % en masse par rapport à la résine, soit une fraction volumique de 0,12), il est possible d'obtenir une bonne approximation de la conductivité thermique de la matrice chargée à l'aide de la relation de Maxwell-Eucken [97], exprimée pour une phase continue contenant un type d'inclusions sphériques de diamètre quelconque :

$$\lambda_M = \lambda_r \frac{1 + 2\alpha_{ch,M} \frac{1-\kappa}{1+2\kappa}}{1 - \alpha_{ch,M} \frac{1-\kappa}{1+2\kappa}} \quad \text{avec} \quad \kappa = \frac{\lambda_r}{\lambda_{ch}} \quad (5.2)$$

où  $\alpha_{ch,M}$  représente la fraction volumique de charge dans la matrice, et  $\lambda_M$ ,  $\lambda_r$ ,  $\lambda_{ch}$ , les conductivités thermiques respectives de la matrice, de la résine et des charges.

L'application numérique conduit à la valeur :  $\lambda_M = 0,56 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$

### Conductivité thermique effective du composite

Le composite étudié est élaboré à partir d'un empilement de plis tissés d'épaisseurs égales et sans désorientation entre eux. Par hypothèse, nous supposons les fils de chaîne identiques aux fils de trame. Par conséquent, la conductivité effective du composite est alors équivalente à la conductivité effective du pli (cf eq. 2.7 et 2.8).

Le calcul de la conductivité effective du pli est réalisé numériquement à l'aide du modèle de second changement d'échelle (méthode FFCM). La géométrie idéalisée du renfort fibreux est construite grâce aux caractéristiques morphologiques déterminées à partir d'observations micrographiques du composite. Les fils de chaîne et fils de trame possèdent une section de géométrie « parabolique ». Le pas de tissage est calculé afin de garantir une fraction volumique de fibres dans le composite identique à la fraction annoncée par le fabricant (0,45).

Les valeurs identifiées sont indiquées dans le tableau 5.4. Une représentation de la géométrie idéalisée du motif périodique représentatif de l'architecture est illustrée à

TAB. 5.4 – Paramètres géométriques identifiées.

Largeur des fils	a	:	0,46	mm
Hauteur des fils	b	:	0,12	mm
Pas de tissage	p	:	0,50	mm
Épaisseur du patin de matrice interplis	s	:	$2,5.10^{-3}$	mm
Épaisseur du patin de matrice interfils	r	:	$7,0.10^{-3}$	mm

la figure 5.3. Seuls les fils sont représentés sur cette figure, le maillage de la matrice n'apparaît pas.

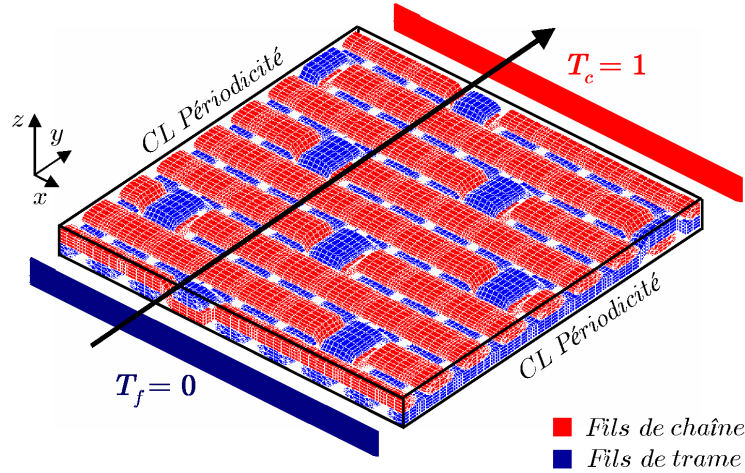


FIG. 5.3 – Expérience numérique réalisée sur le motif périodique représentatif de l'architecture étudiée - détermination de la composante selon y.

La résolution du problème thermique dans les trois directions de l'espace, conduit aux résultats reportés dans le tableau 5.5. Le tenseur de conductivité est symétrique. Les composantes déterminées selon les axes x et y sont rigoureusement identiques, nous vérifions que les termes extra-diagonaux sont bien négligeables.

TAB. 5.5 – Résultats de la modélisation.

	$\lambda_C^{\parallel}$ ( $\lambda_{xx} = \lambda_{yy}$ )	$\lambda_C^{\perp}$ ( $\lambda_{zz}$ )
Grandeurs identifiées (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	1,05	0,88

### Sensibilité aux paramètres et intervalle de confiance

Si elle est d'une compréhension relativement simple, la stratégie de prévision de la conductivité thermique développée, met en jeu un nombre important de données dont il est difficile d'avoir une vision synthétique et de pressentir leur influence sur le résultat final. Ces données, indiquées par le fabricant ou bien mesurées au laboratoire, sont par ailleurs connues avec une incertitude de mesure ajustée selon les performances des appareillages et de la méthode utilisée. Certaines de ces incertitudes peuvent être négligeables vis-à-vis du calcul du tenseur de conductivité thermique du composite ici réalisé, d'autres beaucoup moins. Evaluons par une étude paramétrique dans quelle mesure une erreur sur les données d'entrée du modèle peut entraîner un écart significatif sur le résultat obtenu.

Les valeurs minimale et maximale présent pour chacun des paramètres étudiés correspondent à leur incertitude relative de mesure (cf § 5.1.1). Pour les fractions volumiques, nous avons estimé leur incertitude à  $\pm 5\%$ .

**Sensibilité aux fractions volumiques** La figure 5.4 montre que les deux conductivités effectives calculées  $\lambda_C^\perp$  et  $\lambda_C^\parallel$  sont très peu sensibles à la fraction volumique de charges. Ce résultat n'est pas surprenant puisque ceux-ci sont minoritaires dans le matériau.

La conductivité effective parallèle aux plis est sensible à la fraction volumique de fibres dans le composite et cela davantage que la conductivité effective perpendiculaire aux plis. En revanche, la fraction volumique de fibres dans le fil n'exerce que très peu d'influence sur les conductivités calculées.

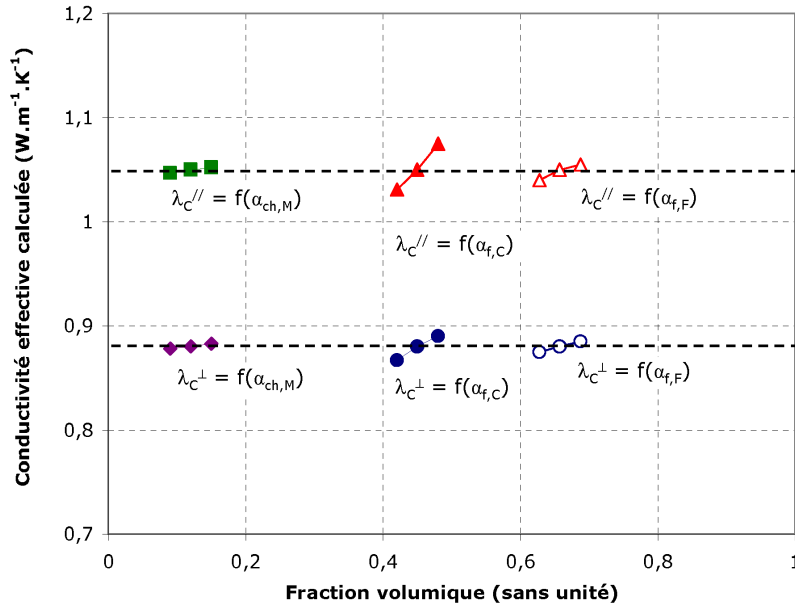
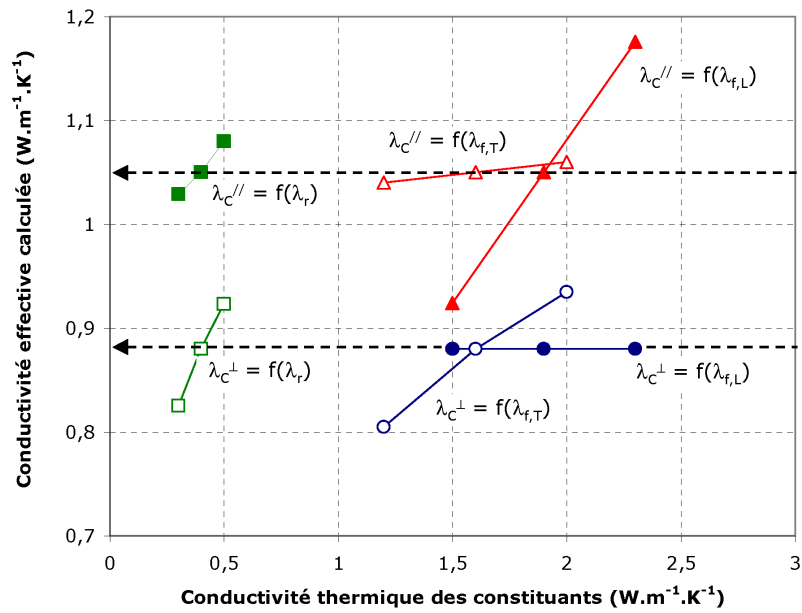
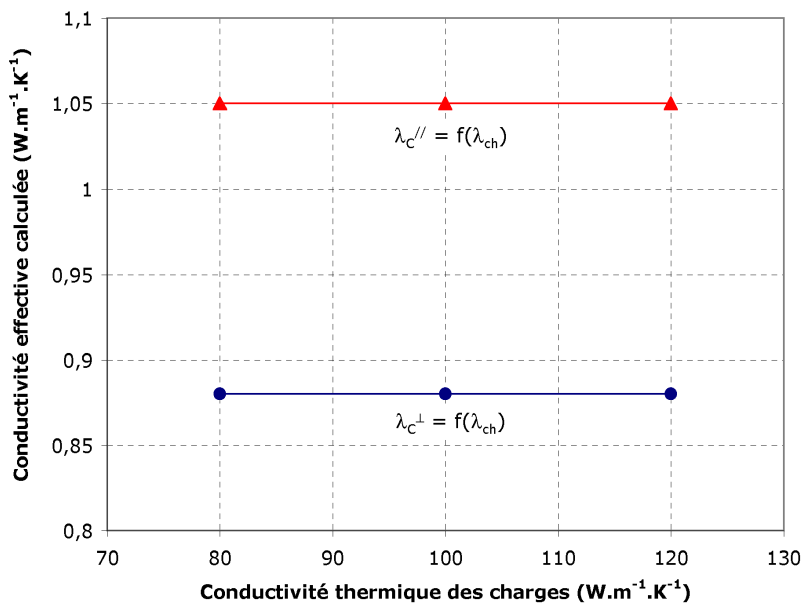


FIG. 5.4 – Sensibilité des conductivités thermiques effectives du composite aux fractions volumiques des constituants.

**Sensibilité aux conductivités thermiques des constituants** Les échelles étant identiques, il est aisé de comparer la figures 5.5a, présentant la sensibilité aux conductivités thermiques des constituants majoritaires fibre et résine, à la figure précédente. Les sensibilités sont ici beaucoup plus importantes, notamment la sensibilité de la conductivité effective parallèle aux plis à la conductivité longitudinale des fibres, de même que la sensibilité de la conductivité transverse aux plis à la conductivité transverse des fibres.



a)



b)

FIG. 5.5 – Sensibilité des conductivités thermiques effectives du composite aux conductivités thermiques : a) des constituants majoritaires fibre et résine, b) des charges.

La sensibilité des conductivités thermiques effectives à la conductivité thermique des charges est quant à elle quasiment nulle (cf FIG. 5.5b), ces dernières étant en très faible proportion dans le matériau. Ce paramètre n'influence pas le résultat de la modélisation.

Au final, un encadrement des conductivités thermiques effectives calculées peut être obtenu en injectant dans nos modèles les valeurs minimales et maximales des paramètres qui minimisent et/ou maximisent le résultat. Les incertitudes relatives associées aux conductivités thermiques effectives ainsi déterminées sont :

$$\frac{\Delta\lambda_C^{\parallel}}{\lambda_C^{\parallel}} = \frac{\lambda_{C,maxi}^{\parallel} - \lambda_{C,mini}^{\parallel}}{2\lambda_C^{\parallel}} = \pm 20\%$$

$$\frac{\Delta\lambda_C^{\perp}}{\lambda_C^{\perp}} = \frac{\lambda_{C,maxi}^{\perp} - \lambda_{C,mini}^{\perp}}{2\lambda_C^{\perp}} = \pm 15\%$$

### 5.1.3 Mesure des propriétés thermiques par la méthode du plan chaud à deux températures

La méthode du plan chaud avec mesure de deux températures décrite au chapitre 3, est employée dans ce paragraphe pour déterminer expérimentalement les propriétés thermiques du composite à température ambiante.

Nous disposons pour cette application de deux échantillons de surface  $50 \times 50 \text{ mm}^2$  découpés dans une plaque d'épaisseur 25 mm. Par hypothèse, les plis étant équilibrés, seules deux expériences sont ici nécessaires pour la caractérisation complète du composite. Dans la première expérience réalisée, l'élément chauffant est placé en contact avec l'échantillon, le tout étant ensuite enveloppé dans du skamol d'effusivité connue ( $E_i = 176 \text{ J.m}^{-2}.\text{K}^{-1}.\text{s}^{-1/2}$ ). L'apport du flux de chaleur s'effectue selon la direction transverse aux plis (sens T, cf FIG. 5.6a). Dans la seconde expé-

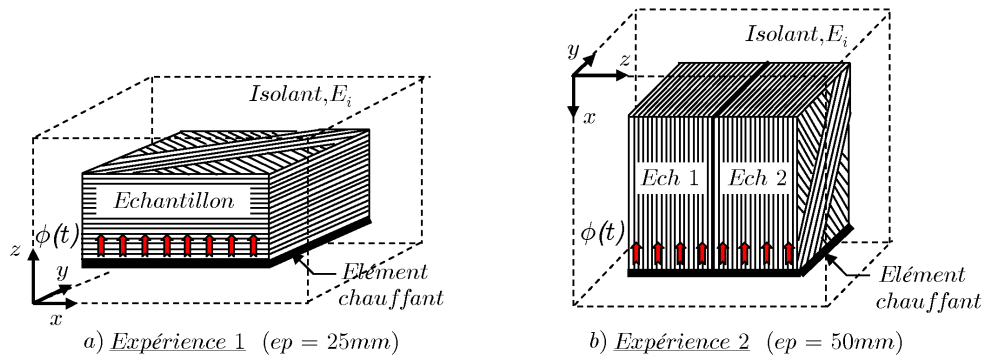


FIG. 5.6 – Schématisation des deux expériences réalisées.



rience, les dimensions uniques de l'élément chauffant nous contraignent à réaliser l'opération sur deux échantillons maintenus côte à côte sur leur tranche. L'apport du flux de chaleur s'effectue selon la direction parallèle aux plis (sens L, cf FIG. 5.6b).

Un plan chauffant en carbone, isolé électriquement par un revêtement de nitrure de bore élaboré par voie gazeuse est utilisé. Sa résistance électrique est de  $16,27 \Omega$ , sa surface utile est de  $50 \times 50 \text{ mm}^2$ . La température est relevée sur les faces avant ( $T_0$ ) et arrière ( $T_2$ ) des échantillons par deux thermocouples à contact séparé de type T.

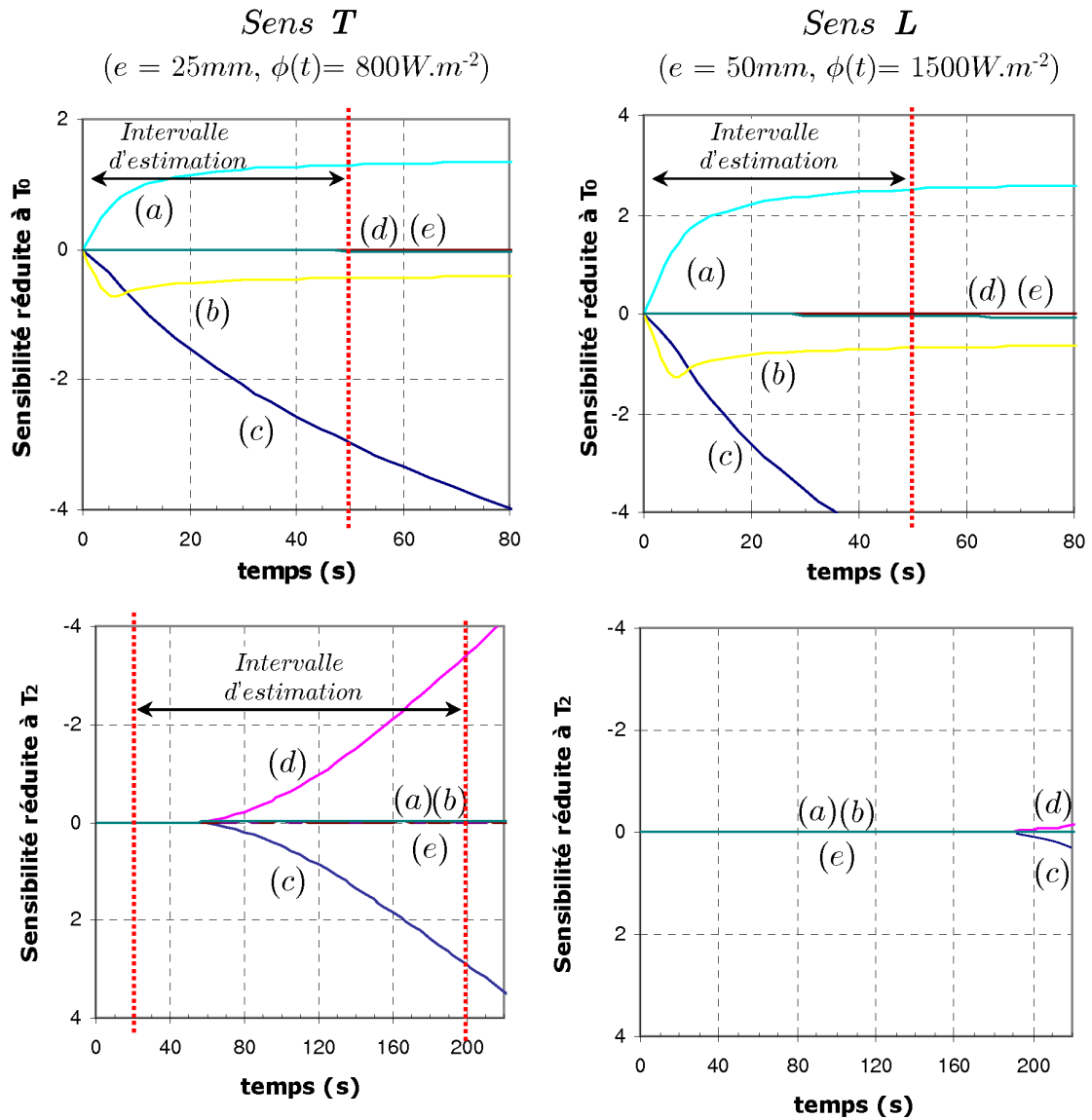
### Conditions expérimentales et intervalle d'estimation

Les sensibilités réduites des deux températures  $T_1(t)$  et  $T_2(t)$  aux variations de  $E$ ,  $\lambda$ ,  $Rc_1$ ,  $mc_p$  et  $h$  sont calculées à l'aide du modèle directe (eq. 3.6 et 3.8) pour les deux configurations expérimentales. L'objectif est ici de définir la densité du flux de chaleur optimale à injecter dans l'échantillon, afin d'identifier un intervalle de temps qui permet une estimation simultanée suffisamment précise de l'effusivité et de la conductivité thermique.

Les valeurs nominales de conductivités thermiques considérées pour ce calcul sont celles déterminées par le modèle de prévision :  $\lambda_C^\perp = 0,88 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $\lambda_C^\parallel = 1,05 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . La masse volumique et la capacité thermique du composite sont fixées respectivement à  $1460 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $900 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour le calcul de l'effusivité (données CEA). Les autres données numériques utilisées sont :  $h = 4 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  (valeur surévaluée),  $mc_p = 0,875 \text{ J.K}^{-1}$  et  $SRc_1 = 0,0015 \text{ m}^2.\text{K.W}^{-1}$ . Les résultats obtenus sont reportés sur la figure 5.7.

La densité du flux de chaleur maximale acceptable à injecter dans l'échantillon de composite dans le sens T (expérience 1, ep = 25 mm) est obtenue pour  $800 \text{ W.m}^{-2}$ . Cette valeur autorise une estimation simultanée de l'effusivité  $E_C^\perp$ , la capacitance  $mc_p$ , la résistance de contact  $Rc_1$  en face avant sur une durée de 50 secondes et de la conductivité  $\lambda_T$  en face arrière sur une durée de 200 secondes sans que les pertes convectives latérales ne viennent perturber l'identification. En revanche, compte tenu de la forte épaisseur des échantillons de composite dans le sens longitudinal (expérience 2, ep = 50 mm), le calcul de sensibilité indique que les pertes convectives latérales ne peuvent plus être négligées au-delà de 50 secondes en face avant pour une densité de flux maximale de  $1500 \text{ W.m}^{-2}$ . Or pour cette valeur, aucune sensibilité à la conductivité thermique n'est ressentie pour la température en face arrière. Seule une mesure directe de l'effusivité est donc envisageable dans ce cas. La conductivité pourra néanmoins être calculée à partir de la capacité thermique volumique déduite de la première expérience par la relation :

$$\lambda_{C,\parallel} = \frac{E_{C,\parallel}^2}{\rho c_p} \quad (5.3)$$



$$(a): Rc_1 \left( \frac{\partial T}{\partial Rc_1} \right) \quad (b): mc_p \left( \frac{\partial T}{\partial mc_p} \right) \quad (c): E \left( \frac{\partial T}{\partial E} \right) \quad (d): \lambda \left( \frac{\partial T}{\partial \lambda} \right) \quad (e): h \left( \frac{\partial T}{\partial h} \right)$$

FIG. 5.7 – Sensibilités réduites des températures  $T_0(t)$  et  $T_2(t)$  aux paramètres  $Rc_1$ ,  $mc_p$ ,  $E$ ,  $\lambda$  et  $h$  et intervalles d'estimation.

## Résultats et discussions

Une série de cinq mesures par expérience a été réalisée dans les conditions identifiées. Le chauffage des échantillons de composite s'est déroulé selon les graphiques présentés sur les figures 5.8a et 5.9a. La densité de flux de chaleur dissipée par le plan chauffant est quasi-constante au cours des expériences. Un exemple de thermogramme expérimental et théorique obtenu après minimisation est représenté sur les figures 5.8b et 5.9b pour chacune des deux expériences. Globalement, les courbes se superposent remarquablement bien, les résidus d'estimation sont très inférieurs à l'unité pour chaque cas traité. Les résultats et les écarts-types relatifs associés à la dispersion des mesures sont reportés dans le tableau 5.6.

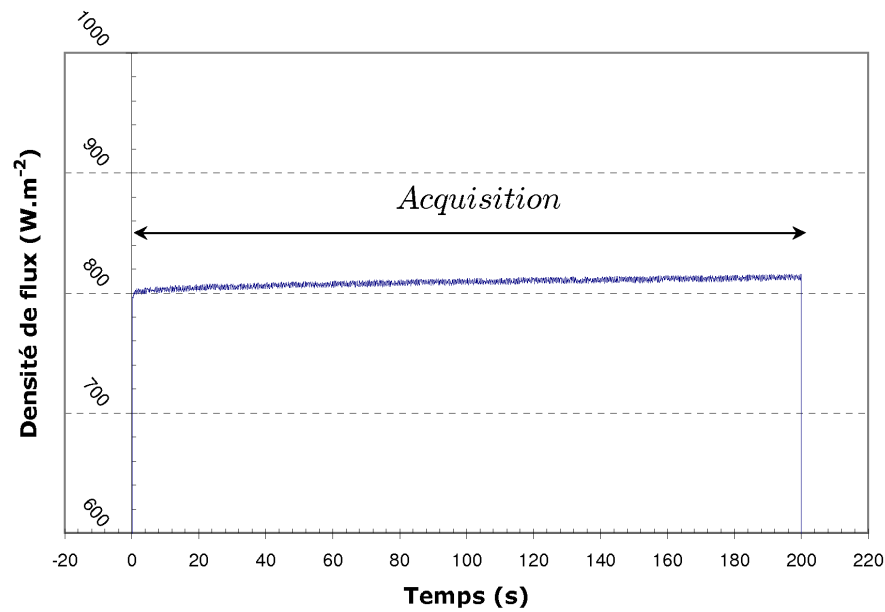
TAB. 5.6 – Tableaux de valeurs (unités SI).

	Estimation face avant		Estimation face arrière		Grandeurs déduites		
	E	Ecart type	$\lambda$	Ecart type	$\rho c p$	a	$\lambda$
Exp. 1	<b>1220</b>	1,03 %	<b>0,91</b>	1,90 %	$1,64 \cdot 10^6$	$5,56 \cdot 10^{-7}$	-
Exp. 2	<b>1403</b>	1,55 %	-	-	-	-	<b>1,20</b>

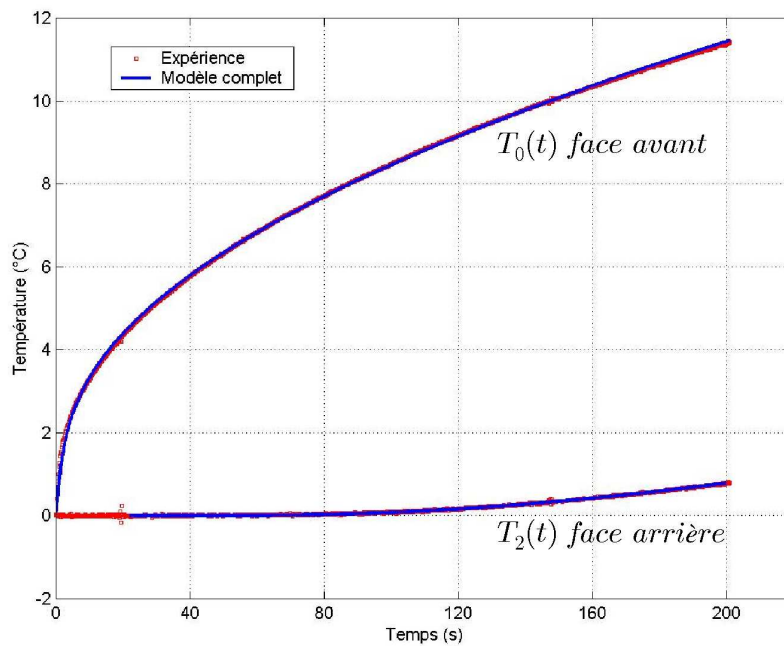
## Incertitude de mesure

Nous recensons ici les différentes sources d'erreurs pouvant avoir des conséquences sur les valeurs identifiées. Si la plupart d'entre elles sont négligeables, certaines le sont beaucoup moins. Lorsque le cas se présente, une nouvelle estimation des propriétés est réalisée en tenant compte du paramètre erroné. La solution qui est alors fournie, nous permet d'évaluer l'influence de cette donnée incertaine sur le résultat. En définitive, un intervalle de confiance global pour la mesure est déduit.

- **Erreur sur la linéarité des propriétés physiques** : Compte tenu de la faible élévation de température lors des expériences (inférieure à la dizaine de degrés), l'hypothèse sur la linéarité des propriétés thermophysiques des corps peut être considérée comme étant vérifiée. Nous négligeons donc l'erreur associée à cette hypothèse.
- **Erreur sur l'isolation thermique du système** : La sensibilité aux pertes convectives latérales intervenant dans le choix des intervalles d'estimation des grandeurs, aucune incertitude n'est associée à cet événement.
- **Erreur sur l'équilibre thermique des échantillons** : L'influence de ce paramètre a été testée en réalisant successivement une série de mesures sans attendre le retour à l'équilibre thermique de l'échantillon. L'erreur alors engendrée sur les résultats précédents est de l'ordre de 2,25 % pour l'effusivité thermique (sens T et L) et de 1,75 % pour la conductivité thermique (sens T).

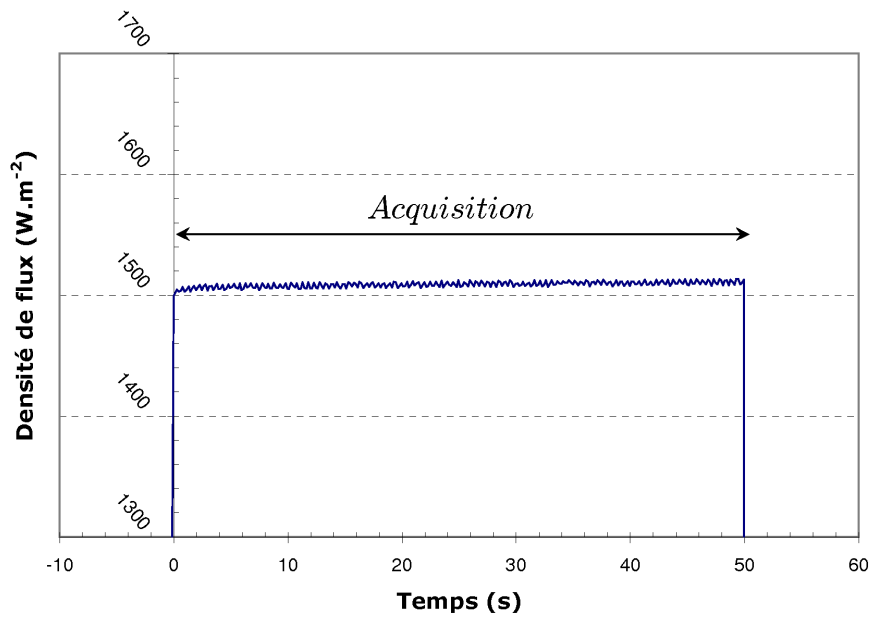


a) Evolution de la puissance injectée

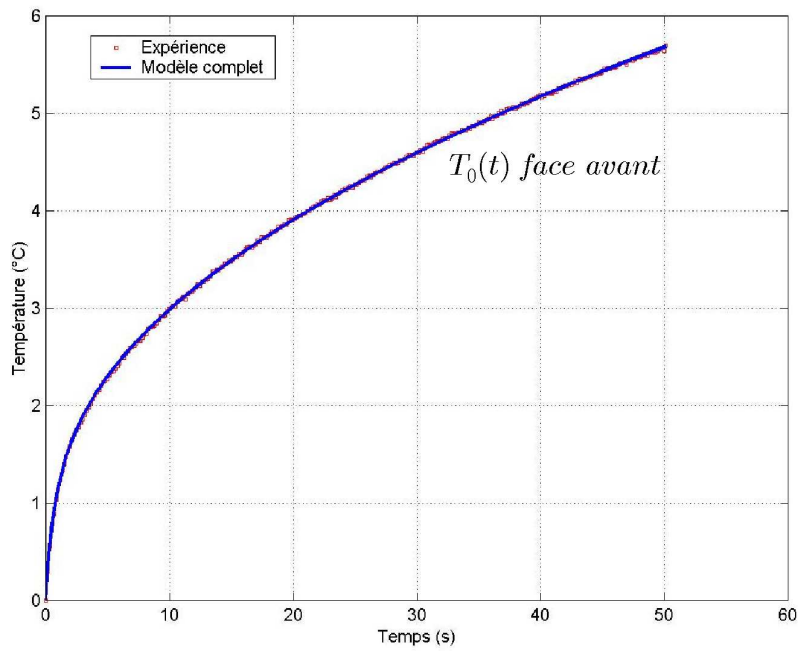


b) Thermogrammes expérimentaux et théoriques après minimisation

FIG. 5.8 – Expérience 1 : caractérisation dans le sens transverse.



a) Evolution de la puissance injectée



b) Thermogrammes expérimentaux et théoriques après minimisation

FIG. 5.9 – Expérience 2 : caractérisation dans le sens long.

- 
- **Erreur sur la mesure des températures :** L'erreur attribuée à la mesure de température par un couple thermoélectrique est minimisée par l'utilisation de fils de diamètre très faible qui sont isolés électriquement par une fine couche de nitrure de bore (bon conducteur thermique). Cela a pour effet de diminuer considérablement le temps de réponse du capteur. La température des soudures froides est par ailleurs contrôlée pour chacune des deux expériences. Nous pouvons donc raisonnablement considérer cette source d'erreur comme négligeable.
  - **Erreur sur les dimensions :** L'erreur sur l'épaisseur des échantillons est très faible ( $\pm 0,01$  mm). Il est donc admis que son influence sur l'identification des propriétés thermophysiques est également très faible. En revanche, l'élément chauffant étant constitué de graphite souple et par conséquent déformable, l'erreur sur les dimensions de sa surface active peut être plus importante. Pour l'élément utilisé, nous l'estimons à 2 %. La répercussion de cette erreur sur les mesures d'effusivité et de conductivité thermique conduit à un écart de 1 %.
  - **Erreur sur la valeur de la densité de flux :** C'est certainement la source d'erreur la plus importante. Il est très facile de montrer qu'une imprécision de quelques pourcents sur le flux dissipé par l'élément chauffant entraîne rapidement un écart conséquent sur la mesure.  
Ainsi, la valeur utilisée lors de l'identification est moyennée sur l'intervalle d'estimation. Elle est obtenue par le produit de l'intensité du courant circulant dans le circuit avec la tension mesurée directement aux bornes de l'élément chauffant<sup>2</sup>. Une marge d'erreur de 3 % sur le flux paraît donc raisonnable pour une mesure à température ambiante. L'écart avec les propriétés identifiées est alors de 2,5 % pour l'effusivité thermique (sens T et L) et 2 % pour la conductivité thermique (sens T).
  - **Erreur sur l'effusivité thermique de l'isolant :** Enfin, la dernière source d'erreur recensée concerne l'effusivité  $E_i$  de l'isolant thermique. Comme cela a déjà été évoqué au chapitre 3, ce paramètre est davantage influent pour la caractérisation des milieux très isolants. Pour cette application, nous considérons cette source d'erreur négligeable.

L'erreur totale sur l'identification des propriétés thermophysiques du composite est finalement de 5,75 % pour l'effusivité thermique (sens T et L) et de 4,75 %<sup>3</sup> pour la conductivité thermique (sens T). Un calcul analytique de l'incertitude sur la conductivité thermique déduite dans le sens longitudinal conduit à la valeur de 28 %.

---

<sup>2</sup>A température ambiante, la résistance des fils est négligeable par rapport à la résistance de l'élément chauffant.

<sup>3</sup>Cette incertitude de mesure est à comparer avec l'incertitude associée à une conductivité thermique qui serait déterminée à partir des mesures de diffusivité thermique (méthode flash) et de capacité thermique volumique (calorimétrie).

### 5.1.4 Confrontation calcul/mesure

Les valeurs numériques des conductivités thermiques effectives calculées à partir des modèles de prévision peuvent être comparées avec les valeurs expérimentales. Nous trouverons dans le tableau 5.7 les résultats obtenus avec leur incertitude respective.

TAB. 5.7 – Confrontation des conductivités thermiques calculées et mesurées.

		Prévision	Mesure	Ecart prév/mes.
Conductivité thermique effective perpendiculaire aux plis (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	$\lambda_C^\perp$	0,88 ± 0,13	0,91 ± 0,05	3,30 %
Conductivité thermique effective parallèle aux plis (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	$\lambda_C^\parallel$	1,05 ± 0,21	1,20 ± 0,33	12,5 %

La conductivité thermique effective mesurée dans le sens transverse au plan des plis est bien reproduite par le calcul (3,30 %). Par contre, la composante effective dans le sens longitudinal est légèrement supérieure à la valeur calculée dans cette même direction (12,5 %). Les sources d'erreur alors évoquées pour rendre compte de cet écart peuvent être attribuées au modèle lui-même ou encore aux données d'entrée :

- au moment de l'entrelacement des fils (modèle de second changement d'échelle), le tenseur de conductivité de ces derniers demeure orienté parallèlement au repère cartésien fixe du composite. Il ne suit pas l'orientation des fils. Ce défaut de modélisation pourrait être à l'origine d'une erreur sur la composante longitudinale de la conductivité du composite, qu'il est difficile d'évaluer.
- dans une toute autre mesure, en supposant que soient correctes toutes les données utilisées pour le calcul de la conductivité transverse  $\lambda_C^T$ , l'étude paramétrique menée au paragraphe 5.1.2, figure 5.5a, indique que la seule donnée n'influençant que très peu  $\lambda_C^T$  mais largement  $\lambda_C^\parallel$ , est la conductivité thermique longitudinale des fibres. Or, l'incertitude de mesure sur cette grandeur difficile à atteindre, est élevée (20 %). Une erreur commise sur cette dernière pourrait expliquer en partie l'écart observé.

Néanmoins, rappelons que la mesure de la conductivité thermique effective dans le sens longitudinal est obtenue indirectement, lui valant une incertitude élevée. L'expérience est de plus réalisée sur deux échantillons maintenus côte à côte impliquant nécessairement une résistance de contact supplémentaire dont nous

n'avons pas tenue compte.

*En conclusion de cette partie, nous retiendrons, étant donné le nombre important de paramètres requis en entrée des modèles, qu'il est difficile de prédire une conductivité thermique de composite stratifié sans une incertitude élevée sur le résultat (15 à 20 % selon la direction considérée). De ce fait, la modélisation thermique ne se suffit pas à elle seule pour réaliser une estimation précise.*

*Par ailleurs, la mesure expérimentale procure une valeur de conductivité nécessitant un point de référence pour en valider le principe et le dispositif associé. La prévision de propriétés thermophysiques telle qu'elle est effectuée ici peut être un bon moyen de validation. En ce sens, la mesure se révèle indissociable de la prévision et inversement. Ces deux approches doivent être menées en parallèle.*



## 5.2 Caractérisation thermique d'une céramique en température

Tous les éléments sont réunis pour procéder à la caractérisation thermique d'un matériau en température. Nous proposons au travers de cette seconde application, d'en démontrer la faisabilité expérimentale. La méthode du plan chaud avec mesure de deux températures est employée. Le milieu étudié est une alumine électrofondue élaborée par Saint-Gobain dont le comportement thermique en température est connu.

### 5.2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental du système de mesure en température utilisé est représenté sur la figure 5.10. Les principaux éléments recensés sur ce dispositif sont les suivants :

- (a) Un four thermostaté fonctionnant sous atmosphère neutre d'argon,
- (b) Deux couples thermoélectriques de type K à contact séparé (fils de chromel et d'alumel de diamètre 7/100 mm) revêtus de BN pulvérisé,
- (c) Une centrale d'acquisition (National Instruments, NI-USB 9211A) permettant d'enregistrer les tensions aux bornes des deux couples thermoélectriques. La fréquence maximale d'acquisition est de 6 Hz. La résolution est de  $1 \mu\text{V}$  ce qui correspond à  $0,025^\circ\text{C}$ ,
- (d) Une alimentation stabilisée en tension continue (0-40V),
- (e) Un multimètre numérique (Keithley 2010) permettant le suivi de l'intensité du courant dans le circuit au cours de l'expérience,
- (f) Une unité centrale de pilotage des différents appareils permettant l'acquisition des données (communication IEEE).

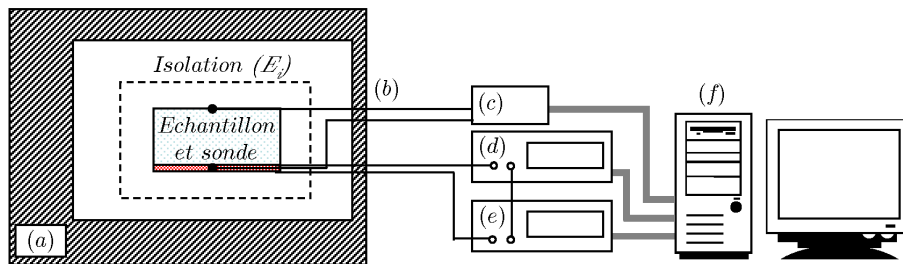


FIG. 5.10 – Schéma du dispositif expérimental pour des mesures en température.

L'échantillon est constitué d'un bloc parallélépipédique de dimension  $50 \times 50 \times 25 \text{ mm}^3$ . L'excitation thermique est délivrée par un plan chauffant en carbone isolé électriquement par un revêtement CVD de type « *SiC/BN* ». Pour cette

application, il est relié au générateur de tension par des fils de platine gainés de perles en alumine. Le système « échantillon + plan chauffant » est confiné dans un isolant de type skamol, la température est relevée durant les essais au centre de l'échantillon, sur ses faces avant et arrière.

## 5.2.2 Etalonnage du plan chauffant

La densité de flux dissipée doit être connue avec précision car cette grandeur agit directement sur l'incertitude de mesure. Un étalonnage préalable, consistant à déterminer la fonction reliant la résistance de l'élément chauffant à la température est donc indispensable, afin d'atteindre une valeur précise du flux déterminée selon :

$$\Phi = \frac{R_T \times I^2}{S} \quad (5.4)$$

où  $R_T$  est la résistance fonction de la température,  $I$  l'intensité du courant mesurée dans le circuit et  $S$  la surface active d'échange. C'est un inconvénient de la méthode lors de son application en température.

Pour cette application, l'étalonnage est réalisé en positionnant le plan chauffant entre deux blocs de cuivre dont la forte conductivité thermique permet de maintenir une température homogène. Un couple thermoélectrique est inséré dans l'un des deux massifs, le tout étant placé dans un four sous atmosphère d'argon. Le chauffage s'effectue alors très lentement de 20 à 1000°C en stabilisant la température tous les 50°C ; la résistance électrique est mesurée aux bornes de la sonde pour chaque équilibre thermique.

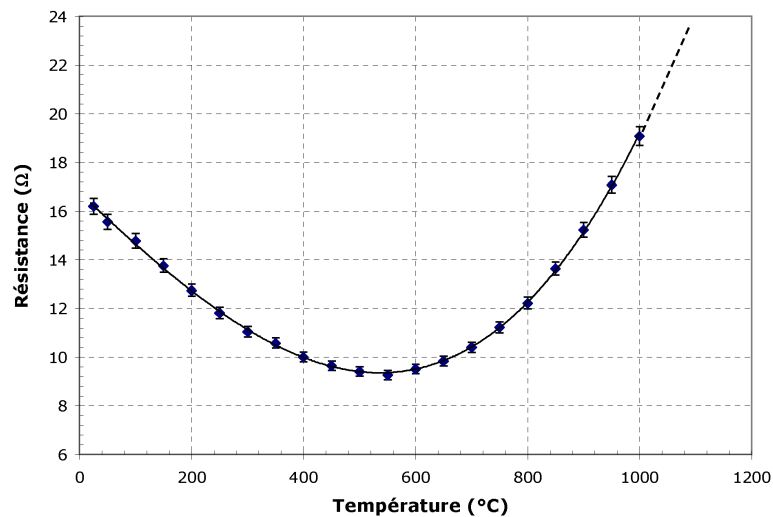


FIG. 5.11 – Courbe d'étalonnage  $R = f(T)$  du plan chauffant.

La courbe d'étalonnage obtenue est reportée figure 5.11. La résistance diminue de 20°C jusqu'à 550°C avant de remonter. Cette variation peut être approchée par la relation polynomiale suivante :

$$R_T = R_0 (1 + a_1 T + a_2 T^2 + a_3 T^3) \quad (5.5)$$

avec  $R_0 = 16,76 \Omega$  et les coefficients :

$$\begin{aligned} a_1 &= 1,19 \cdot 10^{-9} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1} \\ a_2 &= 2,38 \cdot 10^{-7} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1} \\ a_3 &= -1,30 \cdot 10^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1} \end{aligned}$$

Remarquons par ailleurs, qu'un suivi de la résistance électrique du plan chauffant au cours de l'expérience pour atteindre la température en face avant ne permettrait pas une mesure correcte aux alentours de 550°C. La sensibilité de la résistance à la température à cet endroit est quasi-nulle.

### 5.2.3 Résultats et discussion

#### Influence de l'effusivité de l'isolant thermique

L'effusivité thermique du skamol a été largement caractérisée à température ambiante. Or comme toutes les grandeurs thermophysiques, l'effusivité est fonction de la température. Afin d'apprécier l'influence de ce paramètre sur les mesures, l'estimation des propriétés de l'échantillon à 400°C a été réalisée pour différentes valeurs d'effusivité, jusqu'à 20 % inférieure à la valeur obtenue à température ambiante. Les thermogrammes théoriques simulés par le modèle en face avant, sont

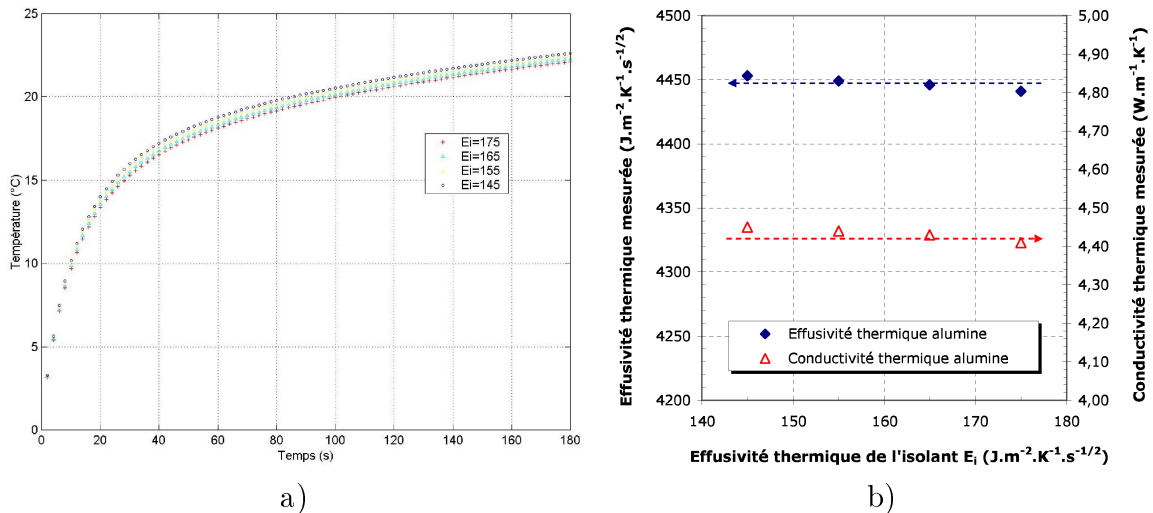


FIG. 5.12 – a) Thermogrammes théoriques simulés pour différentes effusivités  $E_i$ , b) Effusivité et conductivité thermique de l'échantillon estimées à 400°C en fonction de l'effusivité  $E_i$ .

tracés à la figure 5.12a. Le graphique b) rapporte les résultats d'estimation obtenus en fonction de l'effusivité  $E_i$  considérée.

En toute rigueur, notre méthode nécessite de connaître précisément l'effusivité thermique de l'isolant à la température de mesure. En pratique, nous constatons pour le cas étudié que ce paramètre influence peu les résultats d'estimation ( $<$  à 1 % sur  $E$  et  $\lambda$ ). A défaut d'avoir pu caractériser l'effusivité thermique du skamol en température, nous poursuivons la caractérisation en considérant une effusivité constante égale à  $176 \text{ J.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}.\text{s}^{-1/2}$ . Dans la mesure où celle-ci ne varie pas de manière importante, cette hypothèse est recevable.

### Paramètres expérimentaux, minimisation

La caractérisation est réalisée de  $25^\circ\text{C}$  jusqu'à  $1000^\circ\text{C}$ . Pour chaque point de mesure, la valeur du flux et les intervalles d'estimation sont ajustés selon une étude de sensibilité aux différents paramètres (cf TAB. 5.8). Une élévation de température minimale de  $8^\circ\text{C}$  sur la durée de l'essai en face avant est respectée pour chaque expérience.

A titre d'exemple, l'identification des propriétés à  $400^\circ\text{C}$  est présentée au dos sur la figure 5.13.

TAB. 5.8 – Données expérimentales.

$T_{mes}$ °C	Résistance $R_T$ $\Omega$	Densité de flux $W.m^{-2}$	Intervalle d'estimation	
			face avant	face arrière <sup>a</sup>
25	16,22	1600	0-50 s	50-200 s
100	14,64	1550	0-50 s	50-200 s
200	12,72	1500	0-50 s	50-200 s
300	11,12	1500	0-50 s	50-200 s
400	9,96	1500	0-50 s	50-200 s
500	9,36	1500	0-50 s	50-200 s
600	9,43	1550	0-50 s	50-200 s
800	12,09	1550	0-50 s	50-200 s
1000	18,90	1600	0-50 s	50-200 s

<sup>a</sup>Il est choisi de démarrer la minimisation à partir de 50 s car les valeurs de temps plus faibles peuvent conduire à des instabilités numériques dues à la programmation des modèles

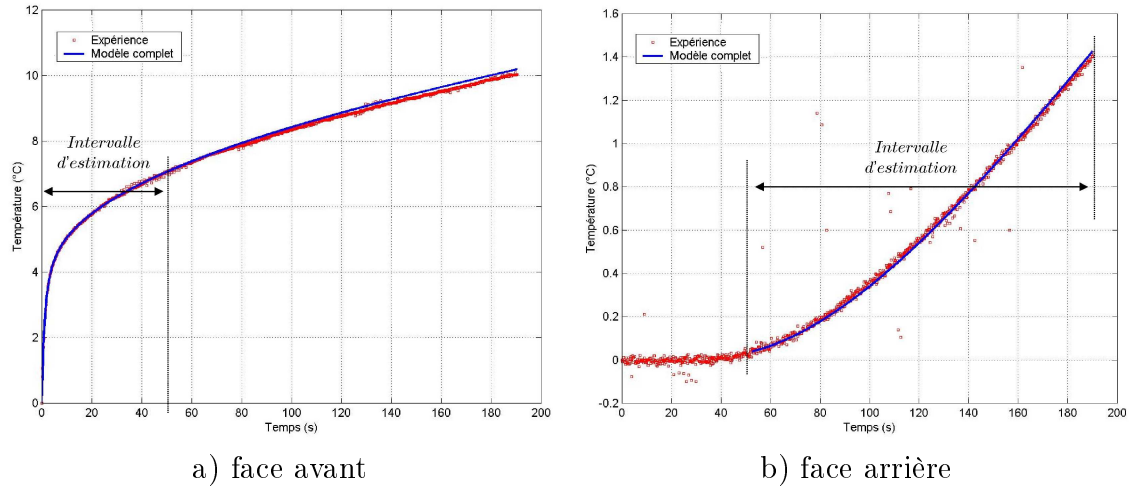


FIG. 5.13 – Mesure réalisée à 400°C - Thermogrammes expérimentaux et théoriques après minimisation.

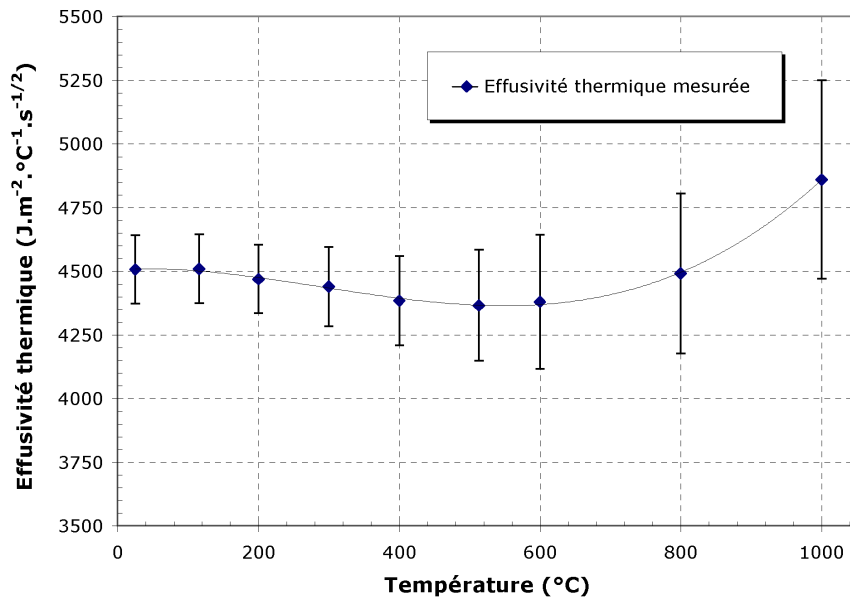
**Résultats et commentaires**

L’effusivité et la conductivité thermique mesurées sur le matériau alumine sont présentés en fonction de la température à la figure 5.14. La variation de l’effusivité thermique mesurée est peu marquée. En revanche, la conductivité thermique décroît de la température ambiante jusqu’aux alentours de 600°C puis augmente rapidement avec la température au dessus de ce seuil. Ce phénomène, caractéristique des milieux céramiques, s’explique par un effet de transfert radiatif interne. L’élévation de température entraîne au sein du matériau poreux, un échange thermique par rayonnement non négligeable, ayant pour conséquence d’augmenter la valeur apparente de la conductivité. Ce résultat est comparé avec les valeurs annoncées par le fabricant [100]. L’évolution de la conductivité thermique est bien reproduite.

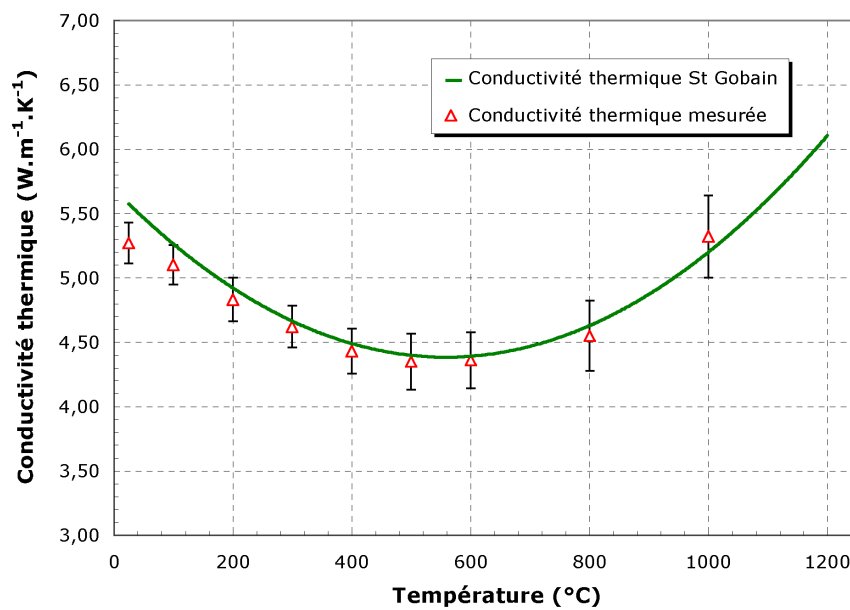
Par ailleurs, il est possible de déduire de ces mesures la variation de la capacité thermique  $c_p$  de l’alumine étudiée avec la température par la relation 5.6. La masse volumique est alors recalculée pour chaque température par la loi sur la dilation des solides à partir des données suivantes :  $\rho_{25} = 3560 \text{ Kg.m}^{-3}$  et  $k_{moy(25-1000)} = 7.10^{-6} \text{ K}^{-1}$  (donnée St Gobain [99]).

$$c_p = \frac{E^2}{\rho_T \lambda} \quad \text{avec} \quad \rho_T = \frac{\rho_{25}}{(1 + k_{moy(25-1000)}(T - T_{25}))^3} \quad (5.6)$$

La courbe est présentée à la figure 5.15. La capacité thermique augmente avec la température, l’allure obtenue est conforme à celle habituellement observée dans la littérature pour cette classe de matériau.



a) Effusivité thermique en fonction de la température



b) Conductivité thermique en fonction de la température

FIG. 5.14 – Caractérisation thermique de l'alumine en température.

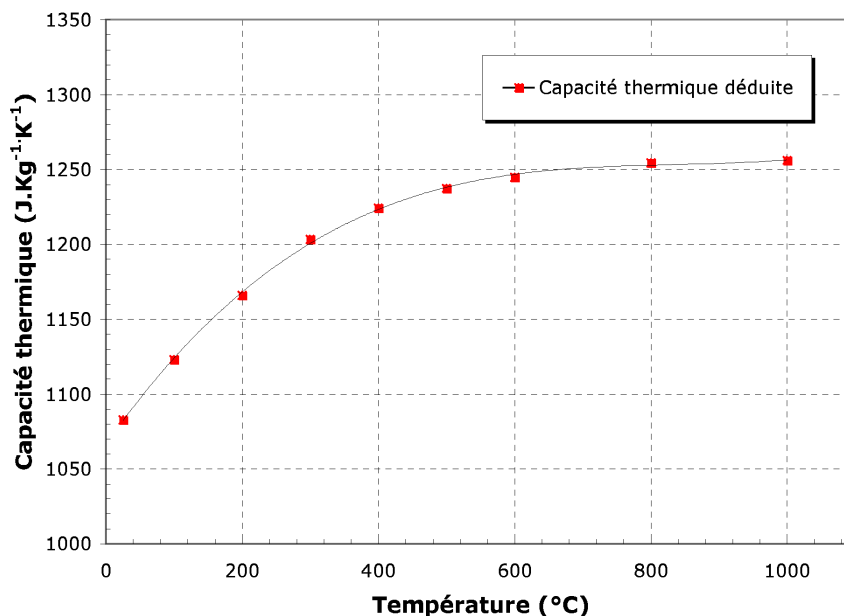


FIG. 5.15 – Capacité thermique de l'alumine en fonction de la température.

### Incertitudes de mesures et précautions opératoires

Les sources d'erreurs à considérer pour évaluer l'incertitude sur les mesures réalisées sont identiques à celles recensées à température ambiante (cf § 5.1.3). Deux différences sont néanmoins soulignées :

- l'opération supplémentaire d'étalonnage de l'élément chauffant accentue davantage l'imprécision sur la densité du flux injectée. Nous en avons tenu compte en portant l'erreur de 2 à 5 % sur cette valeur,
- l'erreur sur l'effusivité thermique de l'isolant n'est plus négligée. Une incertitude de 0,5 % sur les grandeurs estimées est affectée par pas de 200°C.

Les incertitudes sur les effusivités et conductivités mesurées sont reportées respectivement sur les graphiques présentés.

Précisons enfin pour terminer cette partie quelques mises en garde concernant la démarche expérimentale. En dehors des dispositions d'usage, une mesure est acceptée si les précautions suivantes sont respectées :

- l'isolation électrique des instruments de mesure doit être vérifiée afin d'empêcher une quelconque déperdition des signaux lors des essais,
- les surfaces des échantillons doivent être planes afin d'éviter toute résistance de contact parasite qui viendrait fausser les mesures. La bonne disposition des éléments doit également être vérifiée en ce sens,

- pour chaque point de mesure, le système « échantillon + instruments + isolant thermique » doit être en parfait équilibre thermique. Etant donné l'inertie importante due à l'isolant, le temps de stabilisation peut être long (de l'ordre de l'heure).

*Cet exemple d'application en température démontre le bien fondé de notre analyse. L'association de la méthode du plan chaud à deux températures à un dispositif de mesure adapté, a permis d'estimer ici l'effusivité et la conductivité thermique d'un matériau céramique jusqu'à 1000°C avec une incertitude de mesure faible. Même si aucune autre caractérisation n'a pu être effectuée car ce travail arrive en fin de thèse, la faisabilité de la technique est avérée.*

*Des essais supplémentaires devront être effectués afin d'affiner la démarche expérimentale pour aller plus haut en température. L'intégration des capteurs de température linéiques devrait pouvoir conduire à ce résultat, avec une précision accrue quant à la caractérisation des milieux composites hétérogènes. De même, l'instrumentation de l'élément chauffant pour suivre la température en face avant faciliterait l'implémentation du dispositif.*





# Conclusion générale

## TRAVAIL EFFECTUÉ

Motivé par un fort besoin industriel, l'objectif principal de cette étude concernait le développement d'un nouveau dispositif de mesure de la conductivité thermique à haute température, destiné à la caractérisation des matériaux composites thermostructuraux. Pour cela, les travaux engagés ont été partagés entre études théoriques et études expérimentales, faisant appel à des compétences pluridisciplinaires.

La démarche que nous avons suivie s'est déroulée en trois étapes. La première, purement théorique, a conduit au développement d'un code de calcul multiéchelle permettant à partir des propriétés des constituants élémentaires des composites, d'estimer leur conductivité thermique équivalente. L'application sur différents cas réels nous a permis de mieux appréhender le comportement thermique de ces matériaux en vue de la mesure. Ce travail s'est montré indissociable de l'approche métrologique dans le sens où les connaissances apportées ont contribué, aux choix de l'échelle de caractérisation mais également à la validation expérimentale.

La seconde étape s'est consacrée à la mise en place d'une nouvelle méthode de mesure de propriétés thermophysiques par contact, adaptée au contexte des hautes températures. Son principe reprend la philosophie de la méthode flash en face arrière en recourant aux attributs des méthodes à sondes thermiques (fil chaud/plan chaud). Il a ainsi été montré qu'une excitation de type échelon, appliquée sur un échantillon unique de forte épaisseur associé à un isolant thermique, et où la température est relevée sur ses faces avant et arrière, permet d'identifier simultanément de manière directe les valeurs d'effusivité et de conductivité thermique. L'identification est permise par l'établissement d'un modèle fondé sur une modélisation quadripolaire de l'expérience, associée à une étude de sensibilité aux différents paramètres. La mise en oeuvre expérimentale sur une large gamme de matériaux n'a fait que confirmer les impératifs de robustesse, de simplicité et d'efficacité de la méthode au cours de sa validation à température ambiante.

La troisième étape de ce travail a été dédiée à la conception de nouveaux instruments de mesure destinés à la caractérisation thermophysique à haute

température. Des capteurs de température solides linéiques puis des moyens d'excitation, tous deux en carbone revêtus de fines épaisseurs, ont été élaborés selon un même schéma opératoire. Le nitrure de bore sous sa forme hexagonale, utilisé afin de garantir l'isolation électrique des instruments, a démontré qu'il était capable de maintenir son rôle tout en gardant son intégrité physique sous l'effet de la température. La présence d'un film de carbure de silicium intermédiaire entre le substrat et la céramique isolante s'est révélée nécessaire dans certains cas, pour faire face aux situations les plus extrêmes. Les campagnes de tests, réalisées pour chacun des deux instruments, nous ont permis de confirmer un bon nombre de choix techniques comme la nécessité d'un revêtement de BN pulvérisé ou élaboré par CVD selon le niveau de température souhaité et la réalisation des différents traitements thermiques des instruments.

Enfin, les exemples d'applications décrits dans le dernier chapitre confère une cohérence des différents travaux réalisés entre eux et démontre par la même occasion le bien-fondé de notre analyse.

#### INTÉRÊTS ET ORIGINALITÉS - ASPECTS NON RÉSOLUS

L'aspect le plus intéressant et le plus novateur de cette étude concerne assurément le développement des instruments de mesure, tant l'enjeu de la caractérisation thermique à haute température est important. La contribution apportée sur ce point est manifeste. En effet, alors que les sondes thermiques par contact les plus performantes, disponibles dans le commerce, atteignent difficilement 700°C,

TAB. 5.9 – Tableau récapitulatif des performances atteintes et espérées des instruments de mesure développés.

	Revêtement	$T_{lim}$ atteinte	$T_{lim}$ espérée	Coût/servitude
<b>Excitateur</b>				
Papyex	<i>BN</i> aérosol	600°C	600°C	faible
	<i>SiCBN</i> CVD	1000°C	1800/2000°C	procédé technologique
<b>Capteur de température</b>				
Fibre de carbone	sans revêtement	2200°C	2200°C	faible
	<i>BN</i> aérosol	600°C	600°C	faible
	<i>BN</i> ou <i>SiCBN</i> CVD	1000°C <sup>a</sup>	1800/2000°C	procédé technologique

<sup>a</sup>1500°C lors de l'étalonnage des capteurs

les plans chauffants développés dans ce travail ont prouvé qu'ils pouvaient être utilisables à des niveaux de températures supérieurs. De même, les capteurs de température linéiques confectionnés offrent désormais une alternative intéressante face aux systèmes optiques, traditionnellement employés pour accéder à la température, lors de mesures thermiques à haut flux. Si ces derniers n'ont pu être utilisés en conditions d'essai au-delà de 1000°C en raison de soucis d'isolation électrique du système de préhension, critique pour une mesure correcte de la résistance, les capteurs ont montré qu'ils pouvaient atteindre honorablement 1500°C sans être altérés. Le tableau 5.9 résume les performances des instruments, atteintes en condition d'utilisation, et celles espérées à l'avenir.

Ce résultat remarquable, que l'on doit en partie à la combinaison intime du carbone avec le nitrure de bore, ouvre de nouvelles perspectives pour les moyens de caractérisation thermique par contact, jusque là réservés exclusivement à un usage à des niveaux de températures proches de la température ambiante. A l'image de la méthode adoptée du plan chaud à deux températures, l'obtention directe de l'effusivité et de la conductivité thermique au-delà de 600-700°C avec une bonne précision, et une bonne connaissance de l'incertitude constitue une avancée forte.

Bien évidemment, il est prématuré de prétendre pouvoir rivaliser avec les techniques usuelles de méthode flash et calorimétrie à chute, tant ces dernières sont performantes. Des points d'améliorations restent de plus à apporter quant à la conception des instruments et dispositifs de mesure pour accéder aux très hautes températures. Néanmoins, pour la mesure de propriétés thermophysiques jusqu'à 1000°C (voire au-delà), il est prouvé que notre méthode par contact fonctionne et a le mérite d'être à la fois simple dans son utilisation et facilement accessible.

Pour le reste, l'ensemble de l'étude composé à la fois de mesures et de prévisions donne à ce travail un caractère innovant dans le domaine des composites thermostrostructuraux. La jonction entre la modélisation numérique de la conductivité effective d'un composite et l'évaluation de cette propriété sur le banc de mesure a été réalisée avec succès à température ambiante. Il est cependant regrettable de ne pas avoir pu en faire de même en température, les outils développés allant dans le sens d'une telle utilisation. A priori, seuls deux éléments manquent pour aboutir à ce résultat : une connaissance suffisante des propriétés élémentaires de composites en température pour alimenter les modèles et du temps pour réaliser les expérimentations longues.

## **PERSPECTIVES**

A court terme, les perspectives à donner à ces travaux sont la réalisation de caractérisations thermiques en température de composites thermostrostructuraux grâce à la méthode du plan chaud à deux températures. L'intégration des capteurs de température linéiques sur le dispositif de mesure ainsi que l'instrumentation de l'élément chauffant pour suivre la température en face avant devrait conduire à l'obtention de propriétés thermiques avec une précision accrue et avec davantage de facilité expérimentale.

La poursuite de l'étude devra également être consacrée à affiner le procédé de fabrication des instruments pour que ceux-ci soient utilisables à des températures toujours plus élevées. La conception de nouvelles sondes d'excitation de géométries variées telles que les rubans, les disques, associées à une méthode d'estimation de propriétés peut également constituer un axe de recherche intéressant.

Dans le même élan, le transfert de technologie vers l'industrie pour développer des appareillages spécifiques destinés aux hautes températures (mesure de propriétés thermophysiques, contrôle non destructif, etc.) peut être entrepris.

A plus long terme, alors que les applications des matériaux à haute température se développent notamment dans les secteurs du nucléaire et du spatial, cette voie d'investigation pour la recherche thermique qui est de mettre au point des systèmes qui permettront demain de caractériser les matériaux de manière précise, peu onéreuse et simple à mettre en oeuvre dans ses conditions opératoires doit être soutenue. Au-delà de la mesure de propriétés, c'est plus largement la métrologie thermique à haute température qui doit être concernée par cette démarche d'envergure, afin de proposer des capteurs de température et de flux conçus de manière optimale en regard des méthodes numériques qui seront utilisées pour l'exploitation des mesures. Souhaitons que ce travail contribue à stimuler l'intérêt scientifique pour ces méthodes et moyens de caractérisation.

# Bibliographie

- [1] R. NASLAIN : *Introduction aux matériaux composites. 2. Matrices métalliques et céramiques*. CNRS et I.M.C édition, 1985.
- [2] D. GAY : *Matériaux composites*. Hermes Sciences, 5ème édition révisée, Lavoisier édition, 2005.
- [3] R. NASLAIN et F. LANGLAIS : Fundamental and practical aspects of the chemical vapour infiltration of porous materials. *High Temperature Sciences*, 27:221–235, 1990.
- [4] C. SAUDER : *Relation microstructure/propriétés à haute température dans les fibres et matrices de carbone*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux n°2477, 2001.
- [5] H. PLAISANTIN : *Etude de la carbonisation de fibres cellulosiques*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 1999.
- [6] C. BOÉCHAT : Modélisation thermique des composites thermostructuraux. Stage de master II, 2004. Encadrement C.Lorrette et J.M. Goyhénèche.
- [7] D.D. EDIE et E.G. STONER : *Effect of microstructure and shape on carbon fiber properties*, chapitre 3, pages 41–70. Carbon-Carbon Materials and composites, 1993.
- [8] T. YAMANE, S. KATAYAMA, M. TODOKI et I. HATTA : Thermal diffusivity measurement of single fibers by an ac calorimetric method. *Journal of Applied Physics*, 8:4358–4365, 1996.
- [9] C. PRADÈRE : *Caractérisation thermique et thermomécanique de fibres de carbone et céramique à très haute température*. Thèse de doctorat, ENSAM Bordeaux, 2004.
- [10] B. NYSTEN : *Microstructure et propriétés de transport : les fibres de carbone*. Thèse de doctorat, Université catholique de Louvain, 1991.

- [11] F. CHRISTIN, R. NASLAIN et C. BERNARD : A thermodynamic approach of silicon carbide CVD. Application to the CVD infiltration of porous carbon-carbon composites. *In 7th Int. Conf. on CVD*, pages 449–514, Princeton, 1979. The electrochemical Society, T.O. Sedgwick and H.Lydtin.
- [12] ROSSIGNOL : 9th int. conf. on CVD. Pennington, 1984. The electrochemical Society, Mc D. Robinson and al.
- [13] H. HANACHE, F. LANGLAIS et R. NASLAIN. *In* J.O. Carlson et AL., éditeur : *5th European Conf. on CVD*, page 219, Uppsala, 1985.
- [14] S. FOUQUET : *Comportement tribologique de matériaux composites à fibres de carbone et à matrice céramique dans le système Si-C*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2003.
- [15] W. KRENKEL et F. BERNDT : C/C-SiC composites for space applications and advanced friction systems. *Materials Science and Engineering*, A 412:177–181, 2005.
- [16] F. LAMOUREUX, G. CAMUS, R. NASLAIN et J. THÉBAULT : Kinetics and mechanisms of oxidation of 2D woven C/SiC composites : 1, experimental approach. *Journal of American Ceramic Society*, 8(77), 1994.
- [17] S. BERTRAND : *Amélioration de la durée de vie des composites SiC/SiC à interphases nanoséquencées (PyC/SiC)<sub>n</sub> et (BN/SiC)<sub>n</sub>*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 1998.
- [18] M. DAUCHER et J.C. CAVALIER : Matériaux composites phénoliques ablatifs. *In Techniques de l'ingénieur*. 2002.
- [19] R.M. PUJOLA et D.L. BALAGEAS : Derniers développements de la méthode flash adaptée aux matériaux composites à renforcements orientés. *High temperature high pressure*, 17, 1985.
- [20] P.J. GEOGHEGAN : Dupont ceramics for structural applications - the sep novoltex technology. *In 3th Textile Structural Composites Symp.*, Philadelphia, 1988.
- [21] T.W. CHOU et F.K. KO, éditeurs. *Textile structural composites*, volume 3. R.B.Pipes, 1997.
- [22] Rohini DEVI et K. RAMA ROA : Carbon-carbon composites - an overview. *Defence Science Journal*, 43, 1993.
- [23] B. HEINDENREICH, R. RENZ et W. KRENKEL : *Short fibre reinforced CMC materials for high performance brakes*. High Temperature Ceramic Matrix Composites HTCMC-4. W.Krenkel, R.Naslain, H.Scheinder, 2001.

- 
- [24] M. REYNE : *Technologie des composites*. 3<sup>ème</sup> éditions. Hermès, 1998.
- [25] R. NASLAIN : *Ceramic Matrix Composites*. R. Warren, Chapman, Hall, London, 1992.
- [26] N. OZISIK : *Heat conduction*. John Wiley, Sons inc., 1993.
- [27] J.M. GOYHÉNÈCHE, G. VIGNOLES et O. COINDREAU : Modélisation thermique des composites thermostructuraux. *In Congrès Français de Thermique*, Presqu'île de Giens, mai 2004. SFT.
- [28] O. COINDREAU : *Etude 3D de préformes fibreuses : interaction entre phénomènes physico-chimiques et géométrie*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux n°2800, 2003.
- [29] D.J. JOHNSON : Structure property relationship in carbon fibres. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 20(3):287–291, 1987.
- [30] M. ENDO : *Thèse de sciences physiques*. Thèse de doctorat, Université de Orléans, 1975.
- [31] V. PLANA : *Caractérisation par méthode inverse et modélisation des propriétés thermophysiques orthotropes des matériaux composites*. Thèse de doctorat, ENSAE n°367, 2004.
- [32] F. EL MOUSSALI : *Contribution à l'étude de la conduction de la chaleur dans un matériau anisotrope et composite*. Thèse de doctorat, Université de Poitiers, 1984.
- [33] R.P.A. ROCHA et M.E. CRUZ : Computed of the effective conductivity of unidirectional fibrous composites with an interfacial thermal resistance. *Numerical Heat Transfert : Part A*, 39, 2001.
- [34] J.M. GOYHÉNÈCHE : Modélisation de la conductivité thermique transverse d'un arrangement carré ou hexagonal de fibres à texture isotrope transverse, radiale ou oignon. *In Congrès Français de thermique*, Vittel, Juin 2002. SFT.
- [35] L RAYLEIGH : On the influence of obstacles arranged in rectangular order upon the properties of a medium. *Phil. Mag.*, 34:481–507, 1892.
- [36] W.T. PERRINS, D.R. MCKENSIE et R.C. MCPHEDRAN : Transport properties of regular arrays of cylinders. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 369:207–225, 1979.
- [37] J.L. AURIAULT : Heterogeneous medium. is an equivalent macroscopic description possible? *Int. J. Engng. Sci.*, 29(7), 1991.
-



- [38] D.L. BALAGEAS et A.M. LUC : Transient thermal behavior of directional reinforced composites : applicability limits of homogeneous property model. *AIAA Journal*, 24, 1986.
- [39] A.S. HOULBERT : *Caractérisation thermique de parois composites opaques - problème d'homogénéisation*. Thèse de doctorat, INPL, 1992.
- [40] D. MAILLET, A. DEGIOVANNI, J.C. BATSALE, C. MOYNE et S. ANDRE : *Thermal Quadrupoles : Solving the Heat Equation through Integral Transforms*. 2000.
- [41] K.D. HAGEN : A solution to unsteady conduction in periodically layered, composite media using a perturbation method. *J. of Heat Transfert*, 109:1021–1023, 1987.
- [42] K. MURALIDHAR : Equivalent conductivity of a heterogeneous medium. *Int. J. heat mass transfert*, 33(8):1759–1766, 1990.
- [43] J.D. ESHELBY : The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion and related problems. *In Proceeding of the Royal Society*, pages 376–396, London A, 1957.
- [44] D. BIGAUD : Prévion des caractéristiques de transfert thermique des composites à renfort textile type interlock. Rapport technique, CEA, 2000.
- [45] Y. BENVENISTE : On the effective thermal conductivity of multiphase composite. *J. of Applied Mathematics and Physics*, 36:696–713, 1986.
- [46] E.H. KERNER : The elastic and thermo elastic properties media. *In Proc. Phys. Soc.*, volume 69B, pages 808–813, 1956.
- [47] O. WIENNER : *Abhandlungen der Mathematisch - Physischen Klasse de Koniglichchen Sachsischen Gelsellschaft der Wissenschaften*. Numéro 32. Akademie des Wiessenschaften, Leipzig, 1912.
- [48] E. BEHRENS : Thermal conductivity of composites materials. *J. of Comp. Mater. 2*, 1968.
- [49] J. ASHTON, J. HALPIN et P. PETIT : Primer on composite materials - analysis. *Technomic publications Co.*, 1969.
- [50] M.W. PILLING, B. YATES, M.A. BLACK et P. TATERSALL : The thermal conductivity of carbon fiber - reinforced composites. *J. of Mater. Sc.*, 14:1326–1338, 1979.
- [51] Z. HASHIN et S. SHTRIKMAN : A variational approach to the theory of the elastic behaviour of polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*, (10):343–352, 1962.

- 
- [52] D. BIGAUD, J.M. GOYHÉNÈCHE et P. HAMELIN : A global-local non linear modelling of effective thermal conductivity tensor of textile-reinforced composites. *Composites Part A : applied science and manufacturing*, 2001.
- [53] D. BRUGGEMAN : Dielectric constant and conductivity of mixtures of isotrope materials. *Ann. Phys.*, 24:636, 1932.
- [54] T. LEWIS et L. NIELSEN : Dynamic mechanical properties of particulates-filled polymers. *J. of Applied Polymers Science*, 14:1449–1970, 1970.
- [55] M.R. KULKARNI et R.P. BRADY : A model of thermal conductivity in laminated carbon/carbon composites. *Composites Sciences and Technology*, 55:277–285, 1997.
- [56] Q.G. NING et T.W. CHOU : Closed form solutions of the in-plane effective thermal conductivities of woven fabric composites. *Composites Sciences and Technology*, 55:41–48, 1995.
- [57] Q.G. NING et T.W. CHOU : A general analytical model for predicting the transverse effective thermal conductivities of woven-fabric composites. *Composites Part A*, 29 A:315–322, 1998.
- [58] A. DASGUPTA, R.K. AGARWAL et S.M. BHANDARKAR : Three dimensional modeling of woven-fabric composites for effective thermo-mechanical and thermal properties. *Composites Sciences and Technology*, 56:209–223, 1996.
- [59] J.M. GOYHÉNÈCHE et A. COSCULLUELA : A multiscale model for the effective thermal conductivity tensor of a stratified composite material. *In 15th symposium on thermophysical properties*, Colorado USA, juin 2003.
- [60] D. D’HUMIÈRES, P. LALLEMAND et U. FRISH : Lattice gaz model for 3d hydrodynamics. *Europhys. Lett.* 2, pages 291–297, 1986.
- [61] D. STAICU : *Conductivité thermique des combustibles nucléaires hétérogènes*. Thèse de doctorat, Insa de Lyon, 2000.
- [62] J.M. GOYHÉNÈCHE : Contribution à l’étude des transferts de chaleur par conduction et rayonnement dans les matériaux anisotropes, 2005. HDR.
- [63] U.V. MARDOCLAR et C.A. NIETRO DE CASTRO : The measurement of thermal conductivity at high temperature. *In 12th ETPC proceedings*, volume 24, pages 551–580, 1992.
- [64] Y. JARNY : Problèmes inverses et estimation de grandeurs en thermique, 1999. Ecole d’hiver METTI’99.
-

- [65] A DEGIOVANNI : Conductivité et diffusivité thermique des solides. *In Techniques de l'ingénieur*, volume RC3. 1994.
- [66] J.M. GOYHÉNÈCHE : *Modélisation et caractérisation thermique à très haute température de matériaux poreux en carbone destinés à l'isolation des corps de rentrée dans l'atmosphère*. Thèse de doctorat, INSA de Lyon, 1997.
- [67] J.C. KRAPEZ, B. HAY, D. DEMANGE et G. GARDETTE : Méthode en flash avant. optimisation de l'expérience pour un monocouche et un bicouche. *In Congrès Français de thermique*, Vittel, Juin 2002. SFT.
- [68] F RIGOLLET : *Caractérisation thermophysique d'un revêtement à l'aide d'une méthode photothermique impulsienne associée à la résolution d'un problème inverse*. Thèse de doctorat, Université de Provence, 1999.
- [69] J.L. BATTAGLIA : Méthodes d'identification de modèles à dérivées d'ordre non entiers et de réduction nodale. application à la résolution de problèmes thermiques inverses dans des systèmes industriels, 2002. HDR.
- [70] W.J. PARKER, R.J. JENKINS, C.P. BUTLER et G.L. ABBOT : Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity and thermal conductivity. *J. Appl. Physics*, 32(9):1679–1684, 1961.
- [71] J.C. BATSALÉ : Mesure de la diffusivité thermique par la méthode flash. *In Techniques de l'ingénieur*, volume RC3. 2004.
- [72] E.P. ROTH : *Thermal Conductivity*, pages 513–524. Ashworth, T. and Smith, D.R., New York, 1983.
- [73] A.K. SENGUPTA et C. GANGULY : Thermal conductivity measurements of ceramic nuclear fuels by laser flash method. *In J.R. Thomas Jr D.P.H. HASSELMAN*, éditeur : *20th International Conference on Thermal Conductivity*, pages 153–163, 1988.
- [74] F.I. CHU, R.E. TAYLOR et A.B. DONALDSON : Parameter estimation in engineering and science. *J. Appl. Phys.*, 51:336–341, 1980.
- [75] B. HAY, S. BARRÉ, J.R. FILTZ, M. JURION, D. ROCHAS et P. SOLLET : A new apparatus for measuring thermal diffusivity and specific heat of solid at very high temperature. *In 17th European Conference on Thermophysical Properties*, Bratislava, Septembre 2005.
- [76] C. RONCHI, M. SHEINDLIN, M. MUSELLA et G.J. HYLAND : Thermal conductivity of uranium dioxide up to 2900 K from simultaneous measurement of the heat capacity and thermal diffusivity. *J. Appl. Phys.*, 85(2):776–789, 1999.

- 
- [77] L. POTTIER : Micrometer scale visualisation of thermal waves by photoreflectance microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 64:1618–1619, 1994.
- [78] D. ROCHAIS, H. LE HOUËDEC, F. ENGUEHARD, J. JUMEL et F. LEPOUTRE : Microscale thermal characterization at temperatures up to 1000°C by photoreflectance microscopy. application to the characterization of carbon fibres. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 38:1498–1503, 2005.
- [79] W HEMMINGER : Thermal conductivity of lead in range -180°C - 500°C. *Int. J. Thermophys.*, 10:765–777, 1989.
- [80] R. SANTINI, L. TADREST, J. PANTALONI et P. CERISER : Measurement of thermal conductivity of molten salt in range 100°C - 500°C. *Int. J. Heat Transf.*, 27:623–626, 1984.
- [81] M.J. LAUBITZ : *Axial heat flow method of measuring thermal conductivity*, volume 1 de *Compendium of Thermophysical Property Measurement Methods*, pages 11–60. Maglic, K.D., Cezailigan, A. and Peletsky, V.E., New York, 1984.
- [82] B. LADEVIE : *Mise au point de dispositif de caractérisation thermophysique de matériaux isolants solides ou pâteux. Extension aux fluides cisailles*. Thèse de doctorat, ENSAM Bordeaux, 1998.
- [83] S.E. GUSTAFSSON : Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials. *Rev. Sci. Instrum.*, 62(3):797–804, 1991.
- [84] S.E. GUSTAFSSON : Transient hot strip techniques for measuring thermal conductivity and thermal diffusivity. *The Rigaku Journal*, 4(1-2):16–28, 1987.
- [85] U. HAMMERSCHMIDT : A new pulse hot strip sensor for measuring thermal conductivity and thermal diffusivity of solids. *Int. J. of Thermophysics*, 24(3):675–682, 2003.
- [86] X. ZHANG : *Méetrologie thermique par méthode quasi-instationnaire : modélisation, identification et application à la caractérisation de solides*. Thèse de doctorat, INPL, 1993.
- [87] <http://www.thermoconcept-sarl.com>, .
- [88] <http://www.hot-disk.com>.
- [89] <http://www.thermoax.com>, .
- [90] <http://www.netzsch.com>.
-

- [91] J.M. GOYHENECHÉ, G. VIGNOLES et O. COINDREAU : Effective thermal conductivity of anisotropic heterogeneous materials by the flux/force correlation method. *Int. J. of Heat and Mass Transfert*, Rédaction en cours.
- [92] Norme ISO 8302 :1991 : Isolation thermique - détermination de la résistance thermique et des propriétés connexes en régime stationnaire - méthode de la plaque chaude gardée, 1991.
- [93] *Thermal characterization of monolithic composite materials, Modeling - Characterization - « Round Robin Test »*, Toulouse, may 19 2005. SFT/Airbus industrie seminar.
- [94] S. DESCOT : Préviation de la conductivité thermique effective de matériaux composites à renforts tissés par éléments. Stage ingénieur, 2003. CEA - LCTS.
- [95] K. WOO et N.S. GOO : Thermal conductivity of carbon-phenolic 8-hardness satin weave composites. *Comp. Struct.*, 66:521–526, 2004.
- [96] Y. GOWAYED et J.C. HWANG : Thermal conductivity of composite materials made from plain weaves and 3-d weaves. *Comp. Eng.*, 5(3):1977–1986, 1995.
- [97] A. EUCKEN : Forsh. *Gebiete Ingenieur*, B3(353):6–21, 1932.
- [98] Y. JANNOT : Caractérisation des propriétés thermophysiques des solides à l'aide de modèles quadripolaires ou de comportement, 2006. HDR.
- [99] CÉRAQUITAINE : communication personnel, 2006.
- [100] St Gobain SEFPRO : Sintered and electrofused products for the glass industry, 2004.
- [101] R.G. SHEPPARD, D. MORGAN, D.M. MATHES et D.J. BRAY : Properties and characteristics of graphite for the edm industry, 2002. Poco Graphite Inc.
- [102] D. DEMANGE et J.C. LAIZET : Mesure de la conductivité thermique des préformes sèches et densifiées. Rapport technique, ONERA, 2000. n°RT 1/03519 DMSC.
- [103] D. CORNU, P. MIELE, R. FAURE, B. BONNETOT, H. MONGEOT et J. BOUX : Conversion of  $B(NHCH_3)_3$  into boron nitride and polyborazine fibres and tubular bn structures derived therefrom. *J. of Mater. Chem.*, 9:757–751, 1999.
- [104] F. GUILHON, B. BONNETOT, D. CORNU et H. MONGEOT : Conversion of tris(isopropylamino)borane to polyborazines. thermal degradation to boron nitride. *Polyhedron*, 15:851–859, 1996.
- [105] T. MATSUO : *Chem. Ec. and Eng. Rev.*, 8(29), 1976.

- 
- [106] V. CHOLET : *Dépôt chimique à partir de la phase gazeuse de bore et de deux de ses composés : sous plasma micro-onde ou en infiltration dans des préformes fibreuses*. Thèse de doctorat, Université de Orléans, 1990.
- [107] M. LEPAROUX : *Elaboration à partir de la phase gazeuse des interphases BN et BNSi pour composites BN/BN(Si)/SiC, structures et propriétés des matériaux obtenus*. Thèse de doctorat, Université de Orléans, 1995.
- [108] S. PROUHET : *Cinétique de la CVD du nitrure de bore dans le système  $BF_3-NH_3-Ar$ . Application aux matériaux composites SiC/SiC à interphase de BN*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 1, 1991.
- [109] F. REBILLAT : *Propriétés des interfaces et matériaux d'interphases dans les CMCs*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 1, 1996.
- [110] D. CORNU : *Obtention de fibres, revêtements et matrices de nitrure de bore à partir de nouveaux précurseurs moléculaires*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 1, 1999.
- [111] H. DUMONT, B. BAYLE, B. BONNETOT et J. BOUIX : Deposition and characterization of  $BN/Si(001)$  using tris(dimethylamino)borane. *Materials Research Bulletin*, 37:1565–1572, 2002.
- [112] S. JACQUES, B. BONNETOT, M.P. BERTHET et H. VINCENT : BN interphase processed by LP-CVD from tris(dimethylamino)borane and characterized using SiC/SiC minicomposites. In *28th International Conference on Advanced Ceramics and Composites : B*, volume 25, 2004.
- [113] C. ROTH : The growth of hexagonal boron nitride thin films on silicon single source precursor. *Thin Solid Films*, 322:9–13, 1998.
- [114] F. REBILLAT, A. GUETTE et C. ROBIN-BROSSE : Chemical and mechanical alterations of SiC nicalon fiber properties during the CVD/CVI process for boron nitride. *Acta mater.*, 47(5):1685–1696, 1999.
- [115] O. DUGNE : On a thermodynamic approach to the chemical phenomena involved in the formation of BN interphase by CVD/CVI from a  $BF_3 - NH_3$  precursor. *Journal of Alloys and Compounds*, 1991.
- [116] A. DEGIOVANNI : Diffusivité et méthode flash. *Revue Générale de Thermique*, 185(420), 1977.
- [117] J. JUMEL : *Microscopie photothermique : Application à la caractérisation des propriétés thermoélastiques microscopiques de composites carbon/carbone et de carrières thermiques*. Thèse de doctorat, LMT, ENS Cachan, 2003.
-

## Bibliographie

---

## Annexe A

# Formalisme des quadripôles thermiques





Dans ce paragraphe, nous définissons  $\theta(x, p)$  la transformée de Laplace de la température  $T(x, t)$  et  $\phi(x, p)$  la transformée de Laplace du flux de chaleur  $\varphi(x, t)$  :

$$\theta(x, p) = \int_0^{\infty} T(x, t) \exp(-pt) dt \quad (\text{A.1})$$

$$\phi(x, p) = \int_0^{\infty} \varphi(x, t) \exp(-pt) dt \quad (\text{A.2})$$

### Quadripôle associé à une couche passive

Considérons un transfert de chaleur unidirectionnel dans la direction  $x$  au travers une couche plane d'épaisseur  $e$ , sans source de chaleur interne et initialement à l'équilibre thermique en régime transitoire. L'équation de la chaleur en coordonnées cartésiennes s'écrit :

$$\frac{\partial^2 T(x, t)}{\partial x^2} = \frac{1}{a} \frac{\partial T(x, t)}{\partial t} \quad (\text{A.3})$$

où  $T(x, t)$  représente la température dans la couche à l'abscisse  $x$  et à l'instant  $t$ ,  $a$  étant la diffusivité thermique du milieu.

Dans l'espace de Laplace, cette équation devient :

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} = \frac{p}{a} \theta \quad \text{si} \quad T(x, 0) = T_0 = 0 \quad (\text{A.4})$$

Elle est homogène et admet une solution de la forme :

$$\theta(x, p) = k_1(p) \operatorname{ch}(qx) + k_2(p) \operatorname{sh}(qx) \quad \text{avec} \quad q = \sqrt{\frac{p}{a}} \quad (\text{A.5})$$

En utilisant la transformée de Laplace du flux, il vient par ailleurs en un point quelconque :

$$\phi(x, p) = L \left[ -\lambda S \frac{\partial T}{\partial x} \right] = -\lambda S \frac{\partial \theta(x, p)}{\partial x} \quad (\text{A.6})$$

ce qui permet d'exprimer  $\phi(x, p)$  en fonction de  $k_1(p)$ ,  $k_2(p)$  et  $x$  :

$$\phi(x, p) = -\lambda S k_1(p) q \operatorname{sh}(qx) - \lambda S k_2(p) q \operatorname{ch}(qx) \quad (\text{A.7})$$

## A. Formalisme des quadripôles thermiques

---

L'écriture des deux relations (A.5) et (A.7) en  $x = 0$  et en  $x = e$  permet d'éliminer les variables  $k_1(p)$  et  $k_2(p)$  et il devient alors possible de relier les grandeurs d'entrée  $\theta_e = \theta_{(x=0)}$  et  $\phi_e = \phi_{(x=0)}$  aux grandeurs de sortie  $\theta_s = \theta_{(x=e)}$  et  $\phi_s = \phi_{(x=e)}$  tel que :

$$\begin{bmatrix} \theta_e \\ \phi_e \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} ch(qe) & \frac{1}{\lambda q S} sh(qe) \\ \lambda q Sch(qe) & ch(qe) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_s \\ \phi_s \end{bmatrix} \quad (\text{A.8})$$

De cette façon, il est à présent aisé de représenter sous forme quadripolaire le transfert de chaleur au sein de la couche plane comme le montre la figure A.1a. Pour cela, nous posons A, B, C et D tel que :

$$\begin{cases} A = D = ch(qe) \\ B = \frac{1}{\lambda q S} sh(qe) \\ C = \lambda q Sch(qe) \end{cases}$$

La couche considérée étant passive, nous vérifions que ces quatre termes ne sont pas indépendants mais liés par la relation :

$$AD - CB = 1 \quad (\text{A.9})$$

Par analogie avec l'électricité, nous pouvons également représenter un schéma électrique équivalent au quadripôle. Celui-ci est constitué de trois impédances (FIG. A.1b) tels que :

$$Z_1 = \frac{A-1}{C} \quad Z_2 = \frac{D-1}{C} \quad Z_3 = \frac{1}{C} \quad (\text{A.10})$$

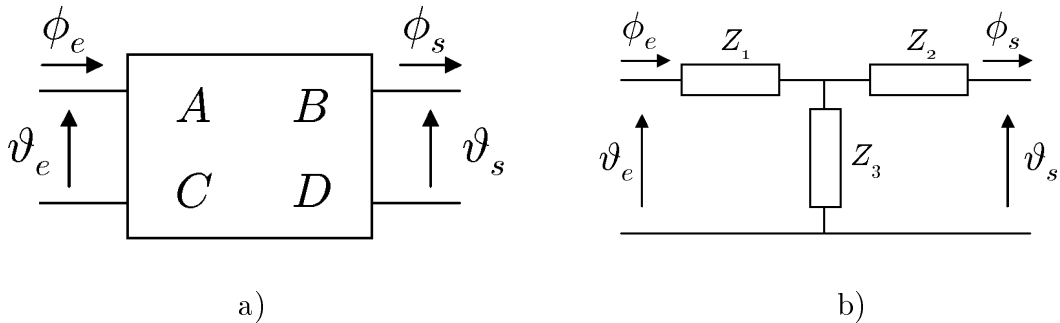


FIG. A.1 – a) Quadripôle associé la couche passive, b) schéma électrique équivalent.

### Quadripôle associé à un milieu semi-infini

Si l'on considère maintenant la même couche passive, homogène et isotrope mais d'extension infinie. La température sur sa face arrière n'évolue pas, elle reste fixée à la température  $T_0 = 0$ . Sous forme matricielle, cela équivaut à :

$$\begin{bmatrix} \theta_e \\ \phi_e \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 \\ \phi_s \end{bmatrix} \quad (\text{A.11})$$

L'expression du dipôle thermique associé à cette couche est alors obtenue en faisant tendre l'épaisseur vers les valeurs infinies, ce qui revient à écrire :

$$\begin{bmatrix} \theta_e \\ \phi_e \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \theta_e \\ \lambda \sqrt{\frac{p}{a}} \phi_e \end{bmatrix} \quad (\text{A.12})$$

Le schéma électrique équivalent est une résistance montée en dérivation d'impédance  $Z_m = \frac{1}{\lambda} \sqrt{\frac{a}{p}}$  (FIG.A.3a).

### Quadripôle associé à une couche à température uniforme

Dans le cas d'un système mince, où l'épaisseur et la conductivité thermique permettent de considérer une température uniforme, la différence entre le flux de chaleur entrant et le flux de chaleur sortant du système peut être donnée simplement par la relation :

$$\varphi_e - \varphi_s = \rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} \quad (\text{A.13})$$

soit dans l'espace de Laplace :

$$\phi_e - \phi_s = \rho c_p p \theta \quad (\text{A.14})$$

Cette équation se traduit sous forme quadripolaire par la relation matricielle :

$$\begin{bmatrix} \theta_e \\ \phi_e \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ \rho c_p p & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_s \\ \phi_s \end{bmatrix} \quad (\text{A.15})$$

Le schéma électrique équivalent est un condensateur montée en dérivation de capacitance  $1/\rho c_p$  (FIG.A.3b)

### Quadripôle associé à un système multicouche

On s'intéresse au transfert de chaleur en régime transitoire dans un empilement de  $n$  couches homogènes successives, sans terme source. Appliquons les résultats obtenus où chaque couche  $i$  est définie par son propre quadripôle thermique. En considérant un contact parfait entre les couches, l'égalité des températures et des flux aux interfaces nous permet d'écrire pour deux couches successives :

## A. Formalisme des quadripôles thermiques

---

$$\begin{bmatrix} \theta_{ei} \\ \phi_{ei} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_i & B_i \\ C_i & D_i \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_{si} \\ \phi_{si} \end{bmatrix} \quad (\text{A.16})$$

soit encore pour n couches,

$$\begin{bmatrix} \theta_e \\ \phi_e \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_s \\ \phi_s \end{bmatrix} \text{ avec } \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_1 & B_1 \\ C_1 & D_1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_2 & B_2 \\ C_2 & D_2 \end{bmatrix} \cdots \begin{bmatrix} A_n & B_n \\ C_n & D_n \end{bmatrix}$$

L'un des intérêts majeurs du formalisme des quadripôles thermiques est ici mis en évidence. Un système multicouche se traite par simple multiplication des matrices associées.

### Quadripôle associé à une résistance de contact

Dans cette représentation, les contacts entre deux couches peuvent être considérés comme imparfaits. Considérons le cas du transfert de chaleur à travers une résistance thermique de contact  $R_c$  (FIG.A.2) :

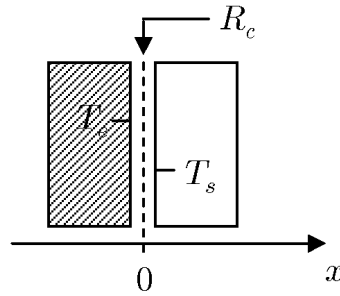


FIG. A.2 – Prise en compte d'une résistance thermique de contact.

Le flux de chaleur s'écrit :

$$\varphi = \frac{T_{e(x=0)} - T_{s(x=0)}}{R_c} \quad \text{soit} \quad T_{e(x=0)} = R_c \varphi + T_{s(x=0)} \quad (\text{A.17})$$

Dans l'espace de Laplace, cela se traduit par :

$$\theta_{e(x=0)} = R_c \varphi + \theta_{s(x=0)} \quad (\text{A.18})$$

Nous pouvons donc écrire la forme matricielle quadripolaire :

$$\begin{bmatrix} \theta_{ei} \\ \phi_{ei} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & R_c \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_{si} \\ \phi_{si} \end{bmatrix} \quad (\text{A.19})$$

Le schéma électrique équivalent est une résistance  $R_c$  montée en série (FIG.A.3c)

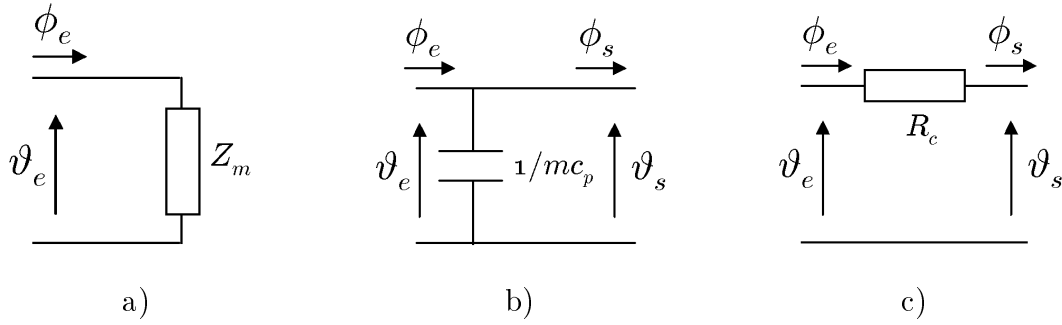


FIG. A.3 – Représentation des schémas électriques équivalents à a) un milieu semi-infini, b) une couche à température uniforme c) une résistance thermique de contact.

### Retour numérique de Laplace

La méthode utilisée est due à FAVERT-STEHFEST et WOO. Connaissant l'expression analytique de la transformée de Laplace  $\theta(p)$  d'une fonction  $T(t)$ , nous en déduisons la valeur numérique  $T(t)$ , pour chaque temps  $t$  par la relation :

$$T(t) = \frac{\ln(2)}{t} \sum_{j=1}^{10} V_j \theta\left(\frac{j \ln(2)}{t}\right), \quad (\text{A.20})$$

Les  $V_i$  sont les coefficients suivants :

$V_1$	=	0,0833333333	$V_6$	=	-236957,6129
$V_2$	=	-32,083333333	$V_7$	=	375911,6923
$V_3$	=	1279,000076	$V_8$	=	-340071,6923
$V_4$	=	-15623,66689	$V_9$	=	164062,5128
$V_5$	=	84244,16946	$V_{10}$	=	-32812,50256

Cette méthode d'inversion a été testée sur des cas particuliers de problème thermique. Dans tous les cas, l'écart relatif maximum avec la solution initiale est inférieur à  $10^{-5}$ .



# Annexe B

## Publication

**Deposition and characterization of hex-BN coating on carbon fibres using tris(dimethylamino)borane precursor**

Manuscrit accepté pour publication dans  
*The Journal of European Ceramic Society*







## Deposition and characterization of hex-BN coating on carbon fibres using tris(dimethylamino)borane precursor

Christophe Lorrette<sup>a,\*</sup>, Patrick Weisbecker<sup>a</sup>, Sylvain Jacques<sup>b</sup>,  
René Pailler<sup>a</sup>, Jean Marc Goyh  n  che<sup>c</sup>

<sup>a</sup> *Laboratoire des Composites Thermostructuraux, UMR 5801 CNRS-SAFRAN-CEA-UBI 3, All  e de La Bo  tie, F-33600 Pessac, France*

<sup>b</sup> *Laboratoire des Multimat  riaux et Interfaces, UMR 5615 Universit   de Lyon 1, CNRS 43, Boulevard du 11 Novembre 1918 F-69622, Villeurbanne Cedex, France*

<sup>c</sup> *Commissariat    l'Energie Atomique, CEA CESTA BP2, F-33114 Le Barp, France*

Received 16 June 2006; received in revised form 3 October 2006; accepted 16 October 2006

### Abstract

Boron nitride thin films were deposited on carbon fibres by chemical vapor deposition from the single source precursor tris(dimethylamino)borane (TDMAB). Hydrogen was used as carrier gas and additional nitrogen was supplied in the form of ammonia. The heating of the substrate was performed by Joule effect. Detailed TEM structural and chemical analyses reveal a meso-graphitic structure with a stoichiometric B/N ratio as confirmed by Auger Electron Spectroscopy (AES). A penetration of carbon element from the fibre was observed in the BN layer close to the interface.

   2006 Elsevier Ltd. All rights reserved.

*Keywords:* TDMAB; Electron microscopy

### 1. Introduction

Hexagonal boron nitride (hex-BN) has recently received considerable attention due to its remarkable properties such as electrical resistivity, high thermal conductivity and chemical inertness. One of the most significant applications is the use of chemical vapour deposition (CVD) boron nitride as interfacial compliant material in thermostructural ceramic matrix composites.<sup>1–3</sup> At moderate temperature (700   C), the presence of a thin hex-BN film between the fibres and the matrix instead of pyrolytic carbon improves the oxidation resistance in SiC-based composite systems. A barrier against oxidation by formation of B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> provides a better protection for fibres with the consequence to maintain the integrity of the composites for a longer duration under loading.<sup>3</sup>

The growth of hexagonal boron nitride thin film by CVD process is usually carried out using the reaction of borontrihalides such as BCl<sub>3</sub> or BF<sub>3</sub> with ammonia in excess relative to the boron source. However, although this process results in

the improvement of the interfacial properties of the composites, hex-BN is expected to be poorly organized and isotropic with the use of BCl<sub>3</sub>–NH<sub>3</sub> gaseous system. In the case of BF<sub>3</sub>, it is required to protect the fibres from a chemical gaseous attack. An alternative to these conventional depositions is given by the organoboron precursors such as tris(dimethylamino)borane (TDMAB).<sup>4,5</sup> This single source precursor, liquid to the room temperature, contains both boron and nitrogen in the same molecule. Furthermore, it is non-toxic, non-explosive and non-corrosive for fibres or CVD device.

In this work, the feasibility of a deposition of hex-BN thin coating on carbon fibres by low pressure CVD in TDMAB/NH<sub>3</sub>/H<sub>2</sub> gaseous system is reported. Chemical composition homogeneity of the coatings as well as detailed textural and structural aspects were also studied.

### 2. Experimental procedure

#### 2.1. Processing

BN films were deposited on XN05 fibres (isotropic ex-braided carbon fibres produced by Nippon Graphite Fiber, average

\* Corresponding author.

E-mail address: [lorrette@lcts.u-bordeaux1.fr](mailto:lorrette@lcts.u-bordeaux1.fr) (C. Lorrette).

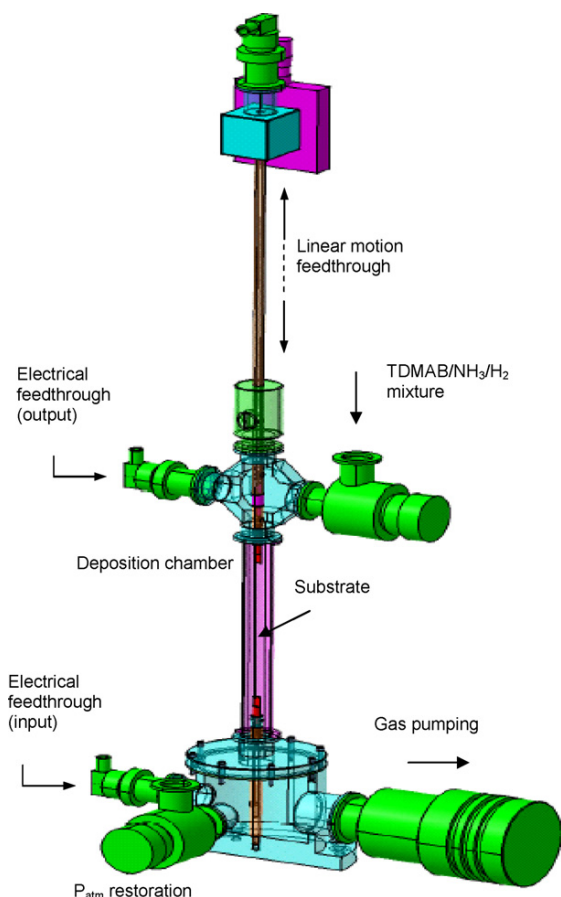


Fig. 1. CVD apparatus for BN processing (schematic)—heating by electrical energy dispelling into the substrate (Joule effect).

diameter  $10\ \mu\text{m}$ ). They were partly chosen for their good mechanical resistance to high temperature. The precursor was a commercially available TDMAB (Aldrich Chemical, 99%) mixed with hydrogen that was used as a carrier gas. Processing conditions came from a previous study.<sup>6</sup> After flow rate regulation at 15 sccm, hydrogen was passed through a bubbler containing the liquid organoboron precursor maintained at a constant temperature of  $35\ ^\circ\text{C}$ . TDMAB enriched carrier gas was introduced in the vertical quartz chamber of the CVD apparatus (Fig. 1). Ammonia was added to the gaseous system with a nominal flow rate of 100 sccm in order to enhance nitrogen source. According to Rohr et al.<sup>4</sup> use of additional nitrogen source is necessary to obtain stoichiometric BN films and to reduce carbon contamination in the coating. All these gases were delivered through a low pressure gas network (0.3 bar), made up of stainless steel surrounded with heating wire to prevent possible re-condensation of the precursor.

One of the main particularities of the CVD process described in this work is given by the heating of the substrate. Contrary to the classical processes that use a hot wall furnace with a graphite susceptor, the heating was here ensured by the crossing of a current directly through the fibres. This heating by Joule Effect was possible due to the high electrical conductivity of the

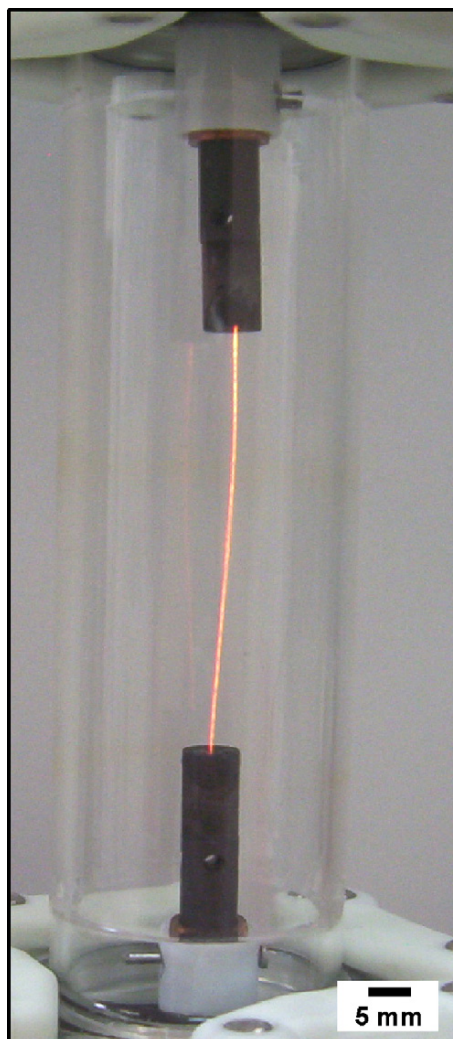


Fig. 2. Low pressure deposit chamber with a carbon fibre heated at  $1300\ ^\circ\text{C}$ .

XN05 carbon fibres<sup>7</sup> (Fig. 2). The temperature was monitored by an optical bi-chromatic pyrometer and fixed at  $1300\ ^\circ\text{C}$ .

## 2.2. Characterization

### 2.2.1. Chemical composition and microstructure

The BN chemical composition of the deposits was quantified by Auger Electron Spectroscopy (AES, VG microlab 310 F) coupled with argon-ion etching. The analysis of the respective atomic percentage of each element (B, C, N and O) was performed in depth profile after film etching with  $\text{Ar}^+$  for 6 min to remove contaminants from the surface. AES surface scans carried out on longitudinal sections of samples were reported as well to closely observe the composition at the BN/fibre interface.

Texture and structure of the deposits were examined by transmission electron microscopy (TEM) including bright and dark field (BF, DF) modes, selected area electron diffraction (SAED) and high-resolution (HR) mode. To ensure a correct accuracy, TEM magnification has been calibrated using a gold standard

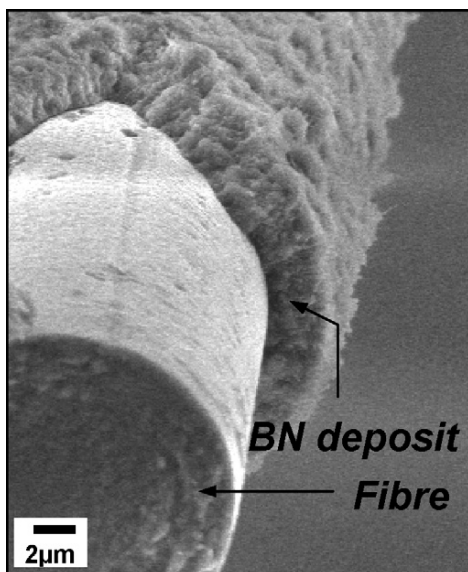


Fig. 3. SEM observation of the BN film obtained after 80 min deposition.

(S135 from Agar Scientific) with a  $d(200)$  spacing equal to 0.204 nm. Investigations were made with a Philips CM30ST microscope operating at 300 kV and equipped with a Gatan 666 Peels spectrometer. The results of analytical electron energy loss spectroscopy (EELS) in the energy range of 0–600 eV were compared with those of AES. GATAN EL/P program was used for this quantitative analysis. Analyses were performed on a sample batch obtained after 80 min deposition.

### 2.2.2. Sample preparation for TEM analyses

BN-coated fibres were thinned prior to the TEM observation using the method described by Berger and Bunsell.<sup>8</sup> A mesh of fibres impregnated with an epoxy resin was stuck on a 3 mm external diameter copper ring. Adjustment of fibres was carried out using an optical microscope so that fibres were perfectly aligned in contact with each other. The as-prepared sample was then directly ion milled with a Gatan Dual ion mill (Model 600). A beam of  $\text{Ar}^+$  sputtered the centre of the sample at an incidence angle of  $15^\circ$  up to obtain a large region for observation.

## 3. Results and discussion

### 3.1. SEM observation and growth kinetic

A scanning electron microscopy observation (SEM, Hitachi S4500 FEG) of the BN film produced under the processing conditions mentioned above in 80 min is shown in Fig. 3. The carbon fibres are seen to be perfectly surrounded by the BN deposit. For short treatment times, low magnified image reveals a smooth surface of the thin deposit with very small grain sizes. Further growth of the BN layer results in a rather rough surface but without preferential grain orientation or distribution. Absence of flaws such as voids at the fibre/BN interface evidences a correct bonding.

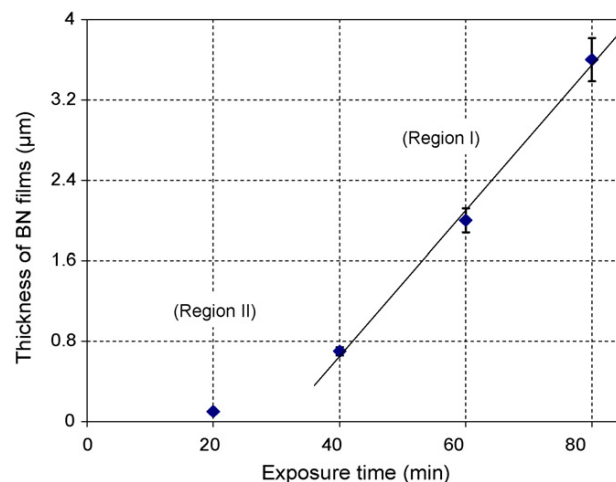


Fig. 4. BN growth kinetics in TDMAB/ $\text{NH}_3/\text{H}_2$  gaseous system—variation of the thickness of BN film with exposure time.

The thickness of the BN film deposited on the carbon fibre is shown as a function of time in Fig. 4. For deposition times longer 40 min, thickness of the BN film increases linearly with time (region I). Typically, one hour of treatment is sufficient to reach a thickness of about  $2 \mu\text{m}$ . For times shorter than 30 min (region II), the process seems to require initial delay time before reaching the stable regime. This result is consistent with the fact that  $\text{NH}_3$  is known at high temperatures and low pressures to slowly react with the free carbon to produce a mixture of HCN and  $\text{CH}_4$ .<sup>9</sup>

Lastly, SEM cross-section observations of the BN deposited sample show a slight thickness gradient of the deposits all along the fibres (55 mm) taken into account by the error bars on the graph (Fig. 4) (<5%). That is linked to the thermal gradient induced by the heat process during the experiment (about  $25^\circ\text{C}$ ).

### 3.2. AES examination

AES depth profile analyses were performed through the BN deposits obtained at the end of different time exposures. Auger spectra were drawn up following the carbon, oxygen, nitrogen and boron elements. For the different examinations, the results are similar to each other. The B/N atomic concentration ratio has been found close to one within the deposits indicating a correct processing condition choice. The slight deficit in nitrogen as suggested by the presented spectrum (Fig. 5a) for which deposition time was 40 min may come from preferential etching. The high carbon content present in the inner regions of the deposit due to the pollution decreases drastically as soon as the outer surface of the BN layer is reached. It is however present within the granular BN layer for a few nanometres. Oxygen is only present as trace in the whole coating.

As for the BN/fibre interface, the analysed areas do not reveal oxygen excess but show an undeniable penetration of the carbon within the BN deposit. AES surface line scans carried out on a sample prepared for the TEM analyses across the interface report the observation (Fig. 5b). On this spectrum, the interface is represented by the vertical interrupted line.

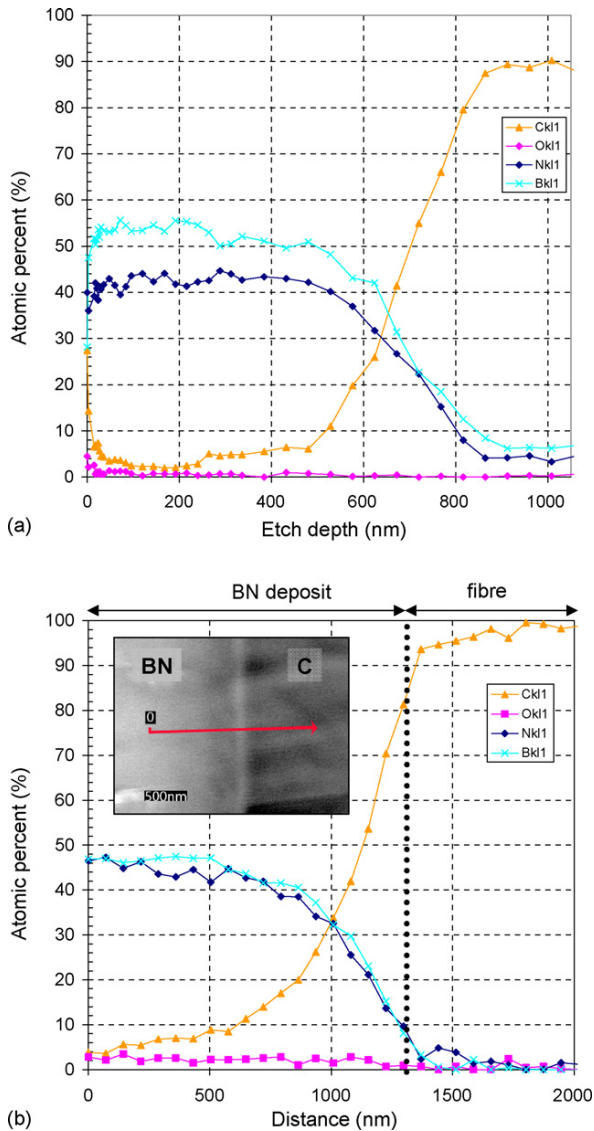


Fig. 5. (a) AES depth profile analyses through the BN film deposited on 40 min and (b) AES surface scan on the BN/fibre interface (sputter speed: 0.2 nm/s, SiO<sub>2</sub>).

The contamination may be attributed to the parasite reaction observed at the start of deposit between ammonia and substrate. The exclusive high content carbon at the BN/fibre interface refutes a possible origin from the TDMAB precursor.

### 3.3. TEM analyses

#### 3.3.1. General overview

The low magnification BF images, an example of which is given in Fig. 6, exhibit a wide distribution of crystallites. They appear bent and randomly oriented with various sizes ranging from one to a hundred nanometres. The large particles stay nevertheless relatively scarce. The BN coating morphology is described as a «fibrous morphology». Most of the grains have a needle-like shape while being entangled with each other. Except

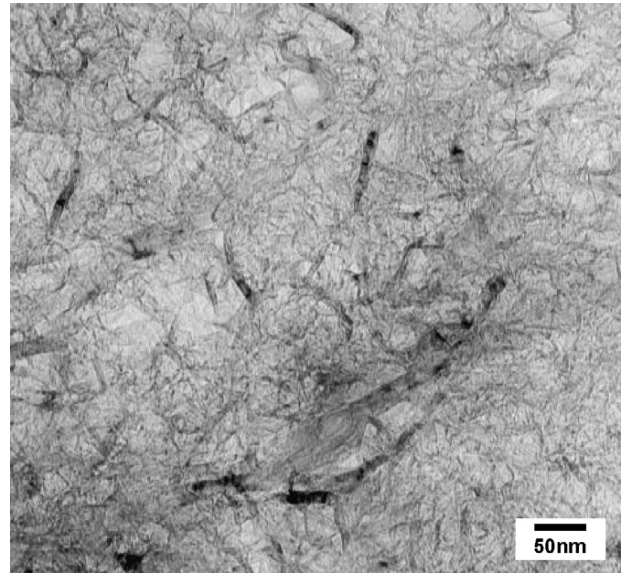


Fig. 6. BN coating BF micrograph (image).

for some agglomerates of crystallites, the layer seems homogeneous in its thickness.

The SAED patterns (Fig. 7) performed on the BN-coating show the (0002) and (0004) typical rings of the hexagonal BN structure. The (10 $\bar{1}$ 0) and (10 $\bar{1}$ 1) rings cannot be distinguished. The same holds for the (11 $\bar{2}$ 0) and (11 $\bar{2}$ 2) rings. They are, respectively, indexed 10 and 11 bands. From the diameter of the diffraction ring, lattice spacing associated with the (0002) crystal plan is deduced to be equal to 0.35 nm.

Furthermore, as evidenced by the circular and continuous diffraction rings, an absence of texture is clearly observed in the deposit.

Fig. 8 shows DF observations of the same area on two parts of the selected (0002) ring located at 90° from each other. In both cases, the crystallites having the (0002) planes oriented in the Bragg conditions are numerous; it can be inferred from the shape and the orientation of the crystallites that there is an orientation relationship between the longitudinal axis of the crystallites and

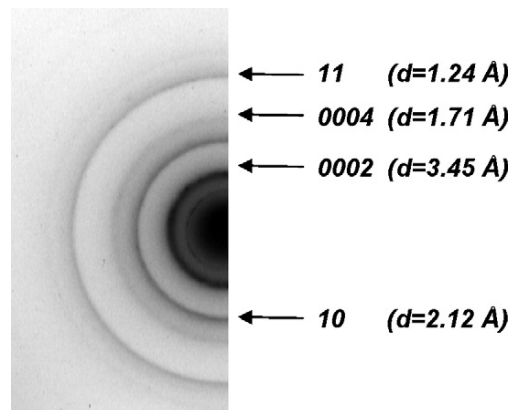


Fig. 7. SAED pattern of the h-BN coating obtained on 0.8  $\mu$ m selected area,  $d$ -spacings are given in brackets.

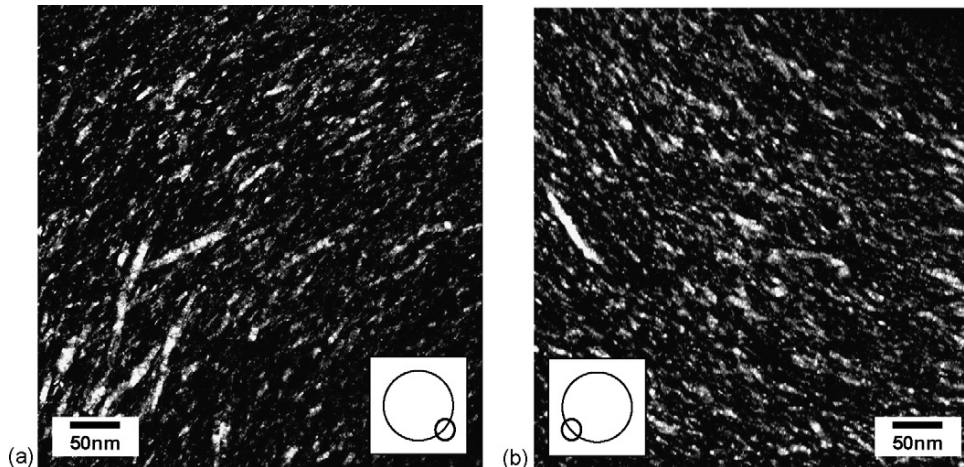


Fig. 8. (a) (0002) DF image of the BN coating and (b) (0002) DF image of exactly the same area after a 90° rotation of the SAED pattern. The BN deposit/fibre interface is located in the upper right corner of both images.

the (0002) planes. At the same time, a study based on image processing gives both size and shape valuation of the present crystallites. The mean width and length are, respectively, equal about 6 and 13 nm.

### 3.3.2. High resolution

The high resolution TEM image of the longitudinal section of the deposit confirms that it is composed of elongated h-BN crystallites whose long axis is parallel to the (0002) plane. The observed lattice fringes are characteristic of a good crystallisation degree (Fig. 9). They are however curved toward random direction displaying a certain isotropy.

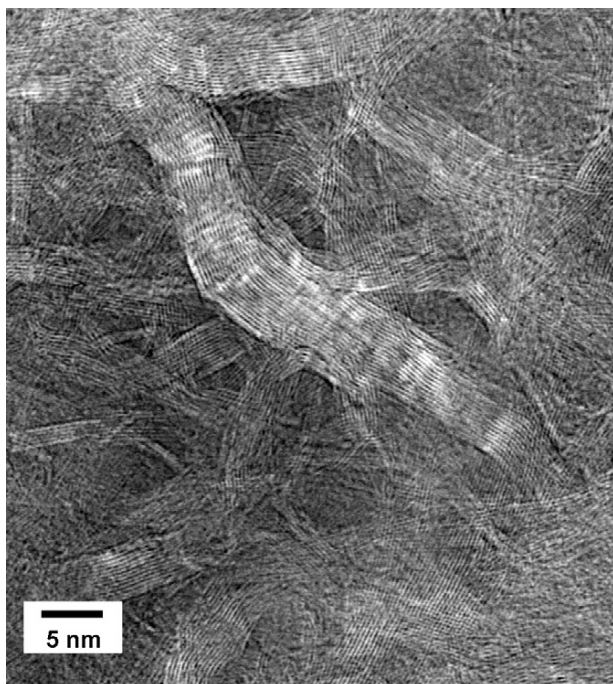


Fig. 9. HR-TEM image of a longitudinal section of the BN coating.

The degree of order in the hexagonal BN lattice is determined by measuring the lattice interlayer spacing. In that way,  $d(0002)$  spacing has been measured on 40 different crystallites, spread out on 7 independent images at the same magnification. Each  $d$ -spacing is determined on a coherent domain corresponding to the stacking of about 15 planes on average. Measurements result in the high mean value of  $0.347 \pm 0.008$  nm compared with 0.330 nm for a highly ordered hexagonal BN structure. This deviation expresses a turbostratic feature from the ceramic signifying there is a two-dimensional ordering with atomic plan disorientations. According to the classification of More et al.<sup>2</sup> this  $d(0002)$  spacing in the range of [0.340–0.355 nm] corresponds to a *meso-graphitic* structure.

All the obtained values were also plotted as a function of the coherence domain length  $L_c$  (Fig. 10). Obviously, the  $d(0002)$  spacing of larger crystallites tends toward a constant value close to 0.34 nm in opposition to the broader distribution of the smaller ones that seem to be more sensitive to the microstrain or plane distortion than the larger ones. Besides, the observed difference

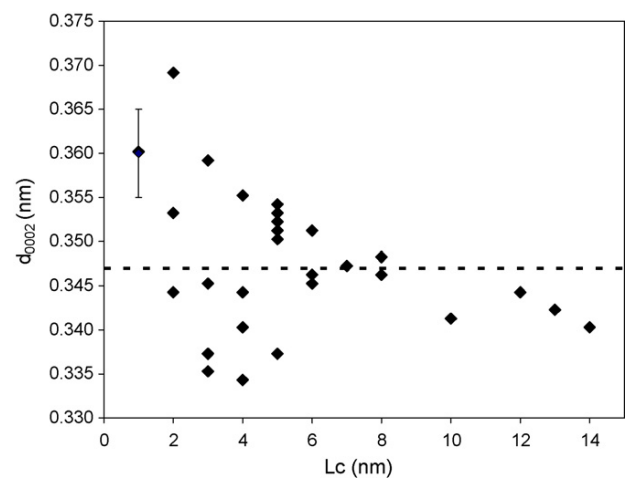


Fig. 10. BN- $d(0002)$  lattice spacing vs. the coherence length  $L_c$ . The dotted line corresponds to the means value (0.348 Å).

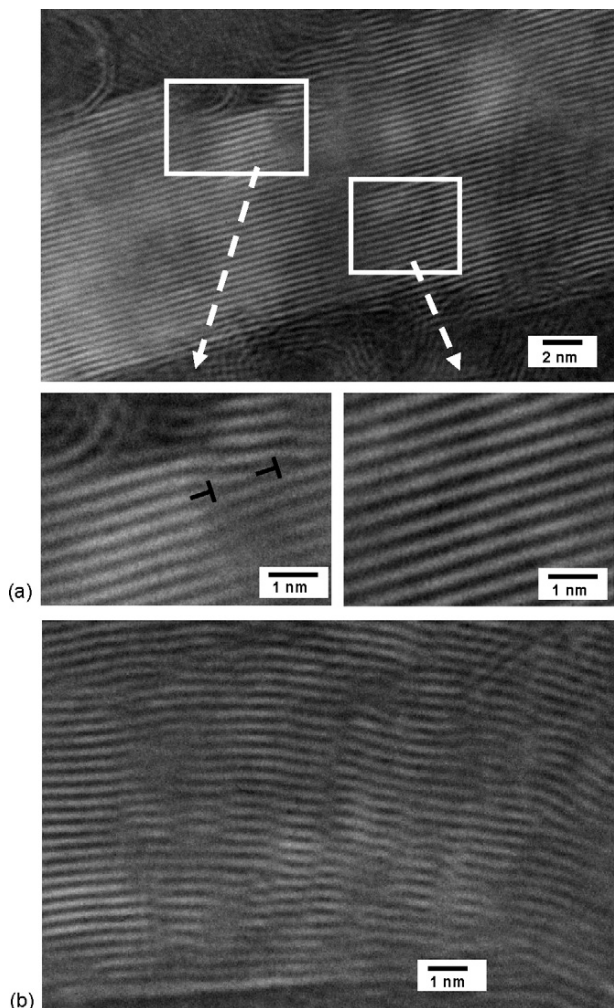


Fig. 11. (a) HR-TEM image of a large BN crystallite. Enlargements reveal a perfectly ordered area (right) and a faulted area (left), (b) HR-TEM image of a faulted BN crystallite.

from a graphitic BN structure would be partly explained by the presence of impurities (oxygen or carbon) in the unit cell. Perfectly crystallized hexagonal BN coexists with turbostratic BN. That is illustrated in Fig. 11. The first HR image (Fig. 11a) exhibits a large h-BN crystallite with a well-crystallized core as evidenced by the straight fringes while the edge reveals some defaults like dislocations and bent lattice fringes. The second image (Fig. 11b) shows a faulted t-BN (turbostratic BN) grain with wavy (0002) lattice fringes and dislocations.

Of the same order, diffractograms obtained by numerical Fast-Fourier Transformations (FFT) from TEM HR images allow another type of sharp lattice fringes to be observed in addition to the basal fringes (see Fig. 12). According to the calibration, the inter-planar spacing measurement indicates 0.21 nm that corresponds to the (10 $\bar{1}$ 0) or (10 $\bar{1}$ 1) planes of the h-BN structure ( $d_{10\bar{1}0} = 0.216$  nm and  $d_{10\bar{1}1} = 0.206$  nm for perfect h-BN). However, the angle of the corresponding lattice fringes with the (0002) lattice fringes equal to 74° lead to confirm the (10 $\bar{1}$ 1) plane (72° for the theoretical angle).

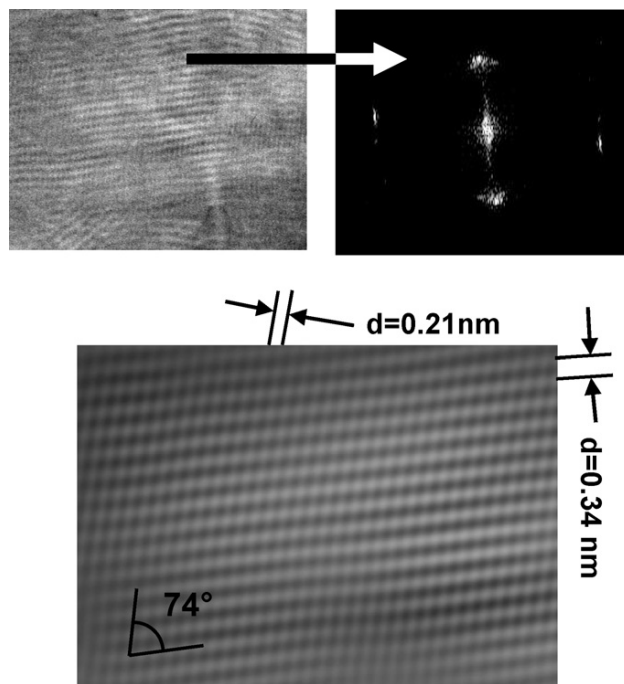


Fig. 12. Microdiffractograms (image) obtained by numerical fast Fourier transform (FFT) from HR-TEM image.

### 3.4. EELS analyses

The interest of the present EELS analyses lies in the confirmation of the chemical composition homogeneity of the BN deposit through a quantitative study. For that purpose, 20 spectra have been recorded at various layer locations. Analyses were performed in TEM imaging mode with an illuminated area of 100 nm.

As an example, the EELS spectra of BN coating obtained at the end of 80 min is given in Fig. 13. It shows the two distinct absorption peaks starting at 188 and 400 eV and corresponding to the known K-shell ionization edges for boron (B-K) and nitrogen (N-K), respectively. The fine structure examination confirms the sp<sup>2</sup> hybridization state typical of the hexagonal

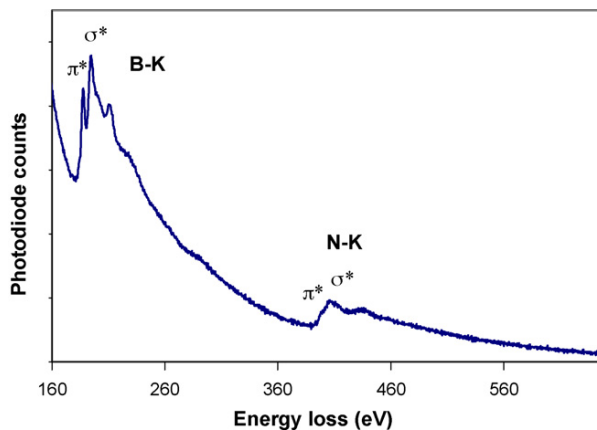


Fig. 13. EELS spectrum from a hex-boron nitride sample obtained after 80 min deposition.

BN<sup>10</sup> (a first sharp peak corresponding to the  $1s \rightarrow \pi^*$  transition, followed by a broader peak due to the  $1s \rightarrow \sigma^*$  transition).

All the analysed spectra suggest the same scheme with a few exceptions. None of them detect oxygen contrary to the occasional presence of the C–K edge in the analysed area. C/B ratio stays nevertheless lower than 0.1 while the N/B ratio remains very close to one, ranging from 0.83 to 1.05 with a mean value of 0.95 that is consistent with the previous AES analysis. Finally, the great similarities between all the spectra seem to show a homogenous BN both along the fibre and through the thickness of the deposit.

#### 4. Conclusion

The use of the TDMAB/NH<sub>3</sub>/H<sub>2</sub> gaseous system for the synthesis of hexagonal boron nitride by CVD process has been demonstrated and discussed in this present study. BN was deposited on carbon fibres with a controlled thickness in the range 0.1–5 μm at 1300 °C. Due to the high resistivity of the carbon, the heating was successfully performed by Joule effect through the substrate.

From a chemical point of view, the combined results from AES with EELS support the stoichiometry 1:1 between boron and nitrogen. The BN/fibre interfaces analyses show a penetration of the carbon element within the deposit which probably occurred at the start of the layer growth. The deposits appear to be free of significant amounts of impurities.

As for the general microstructure, TEM analysis describes the crystal as meso-graphitic hexagonal BN for which perfectly organized BN coexists with a turbostratic form. Numerous elongated and varied size crystallites were perceived within the layer with (0002) lattice fringes parallel to the long axis.

In conformity with previous works,<sup>11</sup> the degree of order could be certainly improved with a high temperature treatment (beyond 2000 °C).

#### Acknowledgements

This work has been supported by the “Aquitaine Region” and the “European Union”. The authors are grateful to M. Alrivie

(LCTS) for her contribution to TEM sample preparation and F. Mollet (LCTS) for his help in the CVD processing of BN coating. M. Lahaye (ICMCB) is acknowledged for the AES analyses.

#### References

1. Jacques, S., Lopez-Marure, A., Vincent, C., Vincent, H. and Bouix, J., SiC/SiC minicomposites with structure-graded BN interphases. *Journal of the European Ceramic Society*, 2000, **20**, 1929–1938.
2. More, K. L., Ailey, K. S., Lowden, R. A. and Lin, H. T., Evaluating the effect of oxygen content in BN interfacial coatings on the stability of SiC/BN/SiC composites. *Composites: Part A*, 1999, **30**, 463–470.
3. Rebillat, F., Guette, A. and Robin-Brosse, C., Chemical and mechanical alterations of SiC Nicalon fibre properties during the CVD/CVI process for boron nitride. *Acta Materials*, 1999, **47**(5), 1685–1696.
4. Rohr, C., Boo, J. H. and Ho, W., The growth of hexagonal boron nitride thin films on silicon using single source precursor. *Thin Solid Films*, 1998, **322**, 9–13.
5. Dumont, H., Bayle, B., Bonnetot, B. and Bouix, J., Deposition and characterization of BN/Si(001) using tris(dimethylamino)borane. *Materials Research Bulletin*, 2002, **37**, 1565–1572.
6. Jacques, S., Bennetot, B., Bethet, M. P. and Vincent, H., BN interphase processed by LP-CVD from tris(dimethylamino)borane and characterized using SiC/SiC minicomposites. In *28th International Conference on Advanced Ceramics and Composites: B, Vol 25*, 2004, pp. 123–128 [issue 4].
7. Sauder, C., Relation microstructure/propriétés à haute température dans les fibres et matrices de carbone. *Thèse de doctorat, Vol 1*. Université de Bordeaux, 2001.
8. Berger, M. H. and Bunsell, A. R., Thin foil preparation of small diameter ceramic or glass fibres for observation by transmission electron microscopy. *Journal of Materials Science Letters*, 1993, **12**, 825–828.
9. Dugne, O., On a thermodynamic approach to the chemical phenomena involved in the formation of a BN interphase by CVD/CVI from a BF<sub>3</sub>–NH<sub>3</sub> precursor. *Journal of Alloys and Compounds*, 1991, **176**, 187.
10. Chassagneux, F., Epicier, T., Toutois, P., Miele, P., Vincent, C. and Vincent, H., Texture, structure and chemistry of a boron nitride fibre studied by high resolution and analytical TEM. *Journal of European Ceramic Society*, 2002, **22**, 2415–2425.
11. Le Gallet, S., Chollon, G., Rebillat, F., Guette, A., Bourrat, X., Naslain, R., Couzi, M. and Bruneel, J. L., Microstructural and microtextural investigation of boron nitride deposit from the BCl<sub>3</sub>–NH<sub>3</sub>–H<sub>2</sub> gas mixtures. *Journal of European Ceramic Society*, 2004, **24**, 33–44.





# Annexe C

## Communication 1

**Modélisation de la conductivité thermique des composites à renfort textile : homogénéisation par éléments finis sur un motif périodique complet**

Congrès Français de Thermique, SFT 2005  
*Reims, 30 mai - 02 juin 2005*



# Modélisation de la conductivité thermique des composites à renfort textile : homogénéisation par éléments finis sur un motif périodique complet

Christophe LORRETTE, Jean-Marc GOYHENECHÉ\*, Caroline BOECHAT, René PAILLER.

Laboratoire des Composites ThermoStructuraux  
UMR 5801, 3 allée de la Boétie, 33600 Pessac, France.

\* (auteur correspondant : [goyheneche@lcts.u-bordeaux1.fr](mailto:goyheneche@lcts.u-bordeaux1.fr))

**Résumé** – Le prédimensionnement des matériaux composites thermostructuraux destinés aux applications aéronautiques, spatiales et nucléaires est un enjeu pour l'optimisation de ces matériaux qui doivent assurer des fonctions mécaniques et thermiques en environnement sévère. Ce travail présente un nouveau modèle destiné au calcul du tenseur de conductivité effective de composites à renfort textile (taffetas, satin, sergé ...). Le calcul est validé par comparaison avec des données expérimentales relevées dans la littérature. L'influence de l'architecture textile et l'intérêt d'un modèle approché sont également étudiés.

## Nomenclature

$N_u$	nombre de fils parallèles à l'axe $u$	<i>Indices</i>	
$T$	température, $K$	$x, y, z$	direction des axes du repère
$x, y, z$	coordonnées cartésiennes	$1, 2, 3, 4$	types de cellules génériques
<i>Symboles grecs</i>		$min, max$	encadrement de la conductivité
$\varphi$	densité de flux de chaleur, $W.m^{-2}$	$ij$	numéro repérant la cellule dans le motif périodique
$\lambda$	conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$		

## 1. Introduction

L'utilisation des matériaux composites à renfort textile est aujourd'hui largement répandue dans des domaines aussi variés que le bâtiment, les transports (terrestres, maritimes, aériens), l'industrie, etc. L'application à l'origine de ce travail est celle des composites thermostructuraux dont la vocation est de supporter des contraintes mécaniques élevées à haute température (1000 °C à 2800 °C), souvent sous de forts gradients thermiques. Ces matériaux, réalisés à partir de fibres et de matrice en carbone ou céramique, sont par exemple utilisés pour réaliser des cols de tuyères, des chambres de combustion, des disques de freins ou encore des boucliers thermiques. Ce sont également les matériaux pressentis pour remplacer les alliages métalliques dans les futurs cœurs de réacteurs nucléaires qui devront fonctionner à des températures supérieures à 1000 °C.

Pour dimensionner les structures composites, il est notamment nécessaire de disposer d'outils de calculs capables de modéliser correctement leur conductivité thermique. Jusqu'à présent, les modèles proposés ont fait appel à des hypothèses importantes concernant la démarche d'homogénéisation thermique. L'objectif de ce travail est de lever ces hypothèses en proposant un modèle thermique complet du composite à renfort textile, basé sur une homogénéisation directe sur le motif périodique définissant le milieu.

## 2. Modèle numérique

### 2.1. Démarche de modélisation

La détermination de la conductivité effective des composites est réalisée à partir de 3 changements d'échelles [1]. Le premier consiste à calculer la conductivité des fils à partir de celle des fibres et de la matrice qui les constituent. Plusieurs types de méthodes (analytique exacte, analytique approchée, éléments finis, etc.) peuvent être utilisées et conduisent généralement à des résultats voisins tant que la fraction volumique de fibres dans le fil demeure inférieure à 60 % environ. Le deuxième changement d'échelle consiste à calculer la conductivité du pli à partir de celle des fils et de la matrice qui le constituent, cette dernière pouvant éventuellement être chargée (particules métalliques, carbone ou céramiques) et/ou poreuse. Enfin, le troisième changement d'échelle consiste à calculer la conductivité du composite à partir de celle de plis identiques superposés de manière désorientée (dans le plan) ou non. Pour cela, des relations analytiques sont généralement utilisées et conduisent à de bons résultats.

On s'intéresse dans ce travail au deuxième changement d'échelle (du fil au pli) pour lequel plusieurs familles de méthodes peuvent être utilisées. La première consiste à réaliser un maillage éléments finis représentant le trajet des fils pour en déduire, par méthode directe, la conductivité effective [2- 4]. La deuxième consiste à appliquer une grille d'éléments cubiques sur le dessin 3D du pli, puis à affecter à chacun des éléments les propriétés thermiques correspondant aux fils ou à la matrice suivant sa localisation. On en déduit un champ de conductivité (tensorielle) qu'il s'agit d'homogénéiser soit par résolution du problème thermique dans le milieu [5, 6] soit par prise de moyenne sur les éléments [7, 8]. Enfin, la troisième consiste à représenter le matériau par un assemblage d'éléments géométriques simples auxquels sont affectées des résistances thermiques dont on déduit, à l'aide de modèles série-parallèle, la conductivité effective [10-12].

Le travail présenté propose de poursuivre les études précédentes dans différentes directions :

- (i) le tenseur de conductivité effective est généralement calculé soit par des méthodes numériques difficiles à mettre en œuvre (éléments finis) [2-6], soit par des modèles analogiques qui conduisent à des représentations simplifiées du milieu [10-12], soit encore par de simples moyennes volumiques [7, 8]. Ce travail propose d'une part de développer une approche complète par éléments finis et d'autre part de réduire le calcul à un modèle analytique/numérique plus simple à mettre en œuvre.
- (ii) lorsqu'ils s'appuient sur une description précise des matériaux (trajets et sections de fils, les modèles proposés sont le plus souvent applicables à des géométries particulières telles que le taffetas [2, 4, 8, 10, 11] ou le satin de 8 [3, 12]. Seuls les modèles faisant appel à une représentation discrète (maillage cubique) du milieu [5, 6] donnent accès à des géométries variées. Le modèle développé ici peut générer tout type d'architecture textile (taffetas, satin, sergé ...) soit de manière automatique, soit sous forme paramétrée par l'utilisateur. Par conséquent, il permet de réaliser le calcul sur un motif périodique complet du matériau.
- (iii) peu de modèles [5] ont la possibilité de prendre en compte différentes sections de fils et d'étudier ainsi leur influence sur la conductivité effective du milieu. Le modèle proposé peut utiliser des sections rectangulaire, parabolique ou lenticulaire.

- (iv) dans les zones de croisement des fils, le contact entre fil de chaîne et fil de trame peut ne pas être parfait. Le modèle proposé permet d'insérer un patin de matrice entre ces deux constituants de manière à simuler la présence d'une résistance thermique de contact. Cette fonction ne sera pas utilisée dans le cadre de cette communication.
- (v) enfin, il sera possible d'attribuer des pas de tissage, des sections et des propriétés de fils différentes pour les directions chaîne et trame de manière à pouvoir simuler des composites hybrides ou non équilibrés.

## 2.2. Définition des cellules élémentaires et assemblage

Le code de calcul CAST3M est utilisé. Un ensemble de 32 cellules élémentaires est construit par opérations de symétrie/translation à partir des 4 types génériques définis à la *figure 2*. Il permet de réaliser toutes les familles d'architectures textiles, comme par exemple le satin de 5 à décochement de 3 représenté à la *figure 3*. Le maillage (fils+matrice) de chaque cellule générique est réalisé indépendamment. Cette opération, complexe, conduit à un assemblage des cellules élémentaires qui garantit la continuité des nœuds et des éléments aux interfaces. Le maillage étant entièrement paramétrable, le nombre d'éléments est ajusté jusqu'à convergence du résultat.

## 2.3. Résolution

La résolution est réalisée par méthode directe [1]. Pour déterminer toutes les composantes du tenseur de conductivité, il est nécessaire de réaliser 3 « expériences numériques » en appliquant successivement un gradient de température dans les 3 directions de l'espace. Par exemple, en appliquant le gradient de température dans la direction  $x$ , on obtient les composantes  $\lambda_{xx}$ ,  $\lambda_{yx}$  et  $\lambda_{zx}$  à l'aide des relations :

$$\lambda_{xx} = -\frac{\langle \varphi_x \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial x} \rangle} \quad \lambda_{yx} = -\frac{\langle \varphi_y \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial x} \rangle} \quad \lambda_{zx} = -\frac{\langle \varphi_z \rangle}{\langle \frac{\partial T}{\partial x} \rangle} \quad (1)$$

Dans le cas des plis, les deux directions de tissage (chaîne et trame) et la direction perpendiculaire au plan définissent les trois directions principales du tenseur de conductivité. Ces directions étant parallèles aux axes du repère, seuls les termes diagonaux ( $\lambda_{xx}$ ,  $\lambda_{yy}$  et  $\lambda_{zz}$ ) du tenseur calculé sont non nuls. Toutefois, toutes les composantes sont systématiquement déterminées afin de vérifier que les termes extra-diagonaux sont négligeables. Enfin, dans le cas particulier d'un pli équilibré, on obtient :  $\lambda_{xx} = \lambda_{yy}$ .

## 2.4. Modèle approché

Selon les caractéristiques du problème, le calcul sur motif périodique complet peut devenir relativement coûteux en temps de calcul et en ressource mémoire. Pour limiter cela, il est possible de proposer un modèle approché. En supposant des conditions de flux nul aux frontières des éléments, toutes les cellules élémentaires créées à partir de la cellule générique de type  $i$  (*figure 2*) possèdent le même tenseur diagonal  $\underline{\lambda}_i$  de conductivité. Dès lors, on réalise une première étape d'homogénéisation qui consiste à calculer le tenseur de conductivité de chaque cellule générique à partir des propriétés du fil et de la matrice. Puis, l'assemblage est effectué en remplaçant les cellules élémentaires par des cellules homogénéisées munies des tenseurs  $\underline{\lambda}_1$ ,  $\underline{\lambda}_2$ ,  $\underline{\lambda}_3$  ou  $\underline{\lambda}_4$ . Enfin, une deuxième étape d'homogénéisation est réalisée sur le motif périodique complet pour en déduire : (i) soit un encadrement des conductivités effectives dans le plan du pli à partir de modèles

série-parallèles [13] :

$$\lambda_{xx,\min} = \frac{N_y}{N_x} \sum_{i=1}^{N_x} \frac{1}{\sum_{j=1}^{N_y} \frac{1}{\lambda_{ij,xx}}} \quad \lambda_{yy,\min} = \frac{N_x}{N_y} \sum_{j=1}^{N_y} \frac{1}{\sum_{i=1}^{N_x} \frac{1}{\lambda_{ij,yy}}} \quad (2)$$

$$\lambda_{xx,\max} = \frac{N_y}{N_x} \frac{1}{\sum_{j=1}^{N_y} \frac{1}{\sum_{i=1}^{N_x} \lambda_{ij,xx}}} \quad \lambda_{yy,\max} = \frac{N_x}{N_y} \frac{1}{\sum_{i=1}^{N_x} \frac{1}{\sum_{j=1}^{N_y} \lambda_{ij,yy}}} \quad (3)$$

(ii) soit directement sa valeur par moyenne volumique [7,8] :

$$\lambda_{xx} = \frac{1}{N_x N_y} \sum_{i=1}^{N_x} \sum_{j=1}^{N_y} \lambda_{ij,xx} \quad \lambda_{yy} = \frac{1}{N_x N_y} \sum_{i=1}^{N_x} \sum_{j=1}^{N_y} \lambda_{ij,yy} \quad \lambda_{zz} = \frac{1}{N_x N_y} \sum_{i=1}^{N_x} \sum_{j=1}^{N_y} \lambda_{ij,zz} \quad (4)$$

(iii) soit enfin par méthode directe (éléments finis) en suivant la procédure décrite au paragraphe 2.3. Dans la direction z, la conductivité calculée par un modèle parallèle est identique à celle calculée par moyenne volumique. Enfin, dans le cas particulier de plis équilibrés, les relations (3) et (4) sont identiques.

### 3. Validation

La validation du modèle complet est réalisée sur deux cas : (i) un composite unidirectionnel pour lequel la solution de référence est donnée par un modèle analytique (arrangement carré de fils) [14] et (ii) un composite à renfort taffetas (fibre de Kevlar, carbone ou verre + résine Epoxy) pour lequel des données expérimentales et des résultats de calculs sont proposés par Gowayed et al. [8]. Les résultats obtenus dans le cas du composite UD (*figure 4*) sont en bon accord avec ceux relevés dans la littérature. Dans le cas du taffetas, la comparaison est plus difficile car les paramètres de tissage (sections, pas), qui ne sont pas indiqués explicitement dans l'étude de Gowayed, ont été mesurés directement sur une microscopie publiée dans [8]. Ces paramètres, qui devraient évoluer en fonction de la fraction volumique de fibres dans le composite, sont supposés constants ici, faute de renseignements supplémentaires. Globalement, les résultats obtenus demeurent proches des mesures réalisées.

## 4. Application

### 4.1. Influence de l'architecture textile

L'influence de l'architecture textile est étudiée en comparant les conductivités thermiques calculées dans le plan (notée  $K_{yy}$ ) et perpendiculaire au plan (notée  $K_{zz}$ ) du pli, pour les tissages les plus classiques (taffetas, satin, sergé) et dans le cas de sections rectangulaire, parabolique ou lenticulaire. Les matériaux sont équilibrés. Les calculs sont réalisés avec les données suivantes : pas de tissage 0.44 mm, largeur des fils 0.35 mm, hauteur des fils 0.15 mm, épaisseur des patins de matrice séparant les plis  $2.5 \times 10^{-3}$  mm et les fils  $7.1 \times 10^{-3}$  mm, et conductivité thermique longitudinale des fils  $3.76 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , transverse des fils  $0.89 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et de la matrice  $0.72 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Les résultats obtenus (*figure 6*) montrent que : (i)  $K_{yy}$  diminue lorsque le nombre d'embuvages augmente alors que le phénomène inverse apparaît pour  $K_{zz}$ , ce qui met en évidence le rôle important joué par le transfert de chaleur dans les fils inclinés ; (ii) par conséquent, l'écart entre  $K_{yy}$  et  $K_{zz}$  est d'autant plus important que le nombre d'embuvages est faible ; (iii)  $K_{yy}$  et  $K_{zz}$  diminuent lorsque le type de section conduit à une fraction volumique de fils plus faible (0.764 si rectangulaire, 0.642 si parabolique et 0.501 si lenticulaire), ce qui met en évidence une importance équivalente de ce paramètre dans les 2 directions du transfert de chaleur.

## 4.2. Confrontation des modèles

Un jeu de données identique au précédent est choisi. Les calculs approchés sont réalisés par les 3 méthodes décrites au paragraphe 2.4. Les résultats obtenus (*figure 7*) montrent que : (i) le calcul approché par méthode directe conduit à un résultat borné par les modèles (2) et (3), une bonne estimation pouvant être obtenue par la moyenne de ces deux limites ; (ii) le calcul complet conduit systématiquement à une valeur de conductivité légèrement inférieure, l'écart entre les deux modèles étant d'autant plus important que le nombre d'embuvages augmente. Ces résultats, peu contrastés car obtenus à partir de conductivités elles-mêmes peu différentes, devraient conduire à des écarts plus marqués dans le cas de fils et de matrice aux conductivités plus éloignées.

## 5. Conclusion

Un modèle éléments finis destiné au calcul de la conductivité effective de composites à renfort textile a été développé et validé par rapport aux données (calculs, mesures) bibliographiques. Des modèles approchés permettent d'obtenir un bon ordre de grandeur des conductivités effectives sans pour autant conduire à une détermination très précise de leur valeur. En perspective à ce travail, une étude paramétrique complète sera menée pour évaluer l'influence de paramètres non abordés jusqu'à présent, tels que, par exemple, la résistance de contact entre fils, les composites hybrides ou non équilibrés.

## Références

- [1] J.M. Goyhénèche, G. Vignoles, O. Coindreau, Modélisation thermique des composites thermostructuraux, Congrès Français de Thermique SFT 2004, 25-28 mai 2004, 19-32.
- [2] A. Dagupsta, R.K. Agarwal, S.M. Bhandarkar, Three dimensional modeling of woven-fabric composites for effective thermo-mechanical and thermal properties, *Comp. Sci. and Tech.*, 56 (1996), 209-223.
- [3] J.M. Goyhénèche, A. Coscolluela, A multiscale model for the effective thermal conductivity tensor of a stratified composite materia, 15th Symposium on "Thermophysical Properties, Boulder CO, 22-27 juin 2003.
- [4] K. Woo, N.S. Goo, Thermal conductivity of carbon-phenolic 8-harness satin weave composites, *Comp. Struct.*, 66 (2004), 521-526.
- [5] D. Bigaud, J.M. Goyhénèche, P. Hamelin, A global-local non-linear modelling of effective thermal conductivity tensor of textile-reinforced composites, *Comp. A*, 32 (2001), 1443-1453.
- [6] O. Coindreau, *Etude 3D de préformes fibreuses : interaction entre phénomènes physico-chimiques et géométrie*, thèse de doctorat, Université Bordeaux I, n° 2800 (2003).
- [7] J.T. Mottram, R. Taylor, Thermal conductivity of fibre-phenolic resin composites. Part II : Numerical evaluation, *Comp. Sci. and Tech.*, 29 (1987), 211-232.
- [8] Y. Gowayed, J.-C. Hwang, Thermal conductivity of composite materials made from plain waves and 3-D waves, *Comp. Eng.*, 5 (9) (1995), 1977-1986.
- [9] Y. Gowayed, J.C. Hwang, M. Chapman, Thermal conductivity of textile composites with arbitrary preform structures, *J. Comp. Tech.*, 17 (1995), 56-62.
- [10] Q.-G. Ning, T.-W. Chou, Closed-form solutions of the in-plane effective thermal conductivities of woven-fabric composites, *Comp. Sci. and Tech.*, 55 (1995), 41-48.
- [11] Q.-G. Ning, T.-W. Chou, Closed-form solutions of the transverse effective thermal conductivities of woven-fabric composites, *J. Comp. Mat.*, 29 (17) (1995), 2280-2294.
- [12] Q.-G. Ning, T.-W. Chou, A general analytical model for predicting the transverse effective thermal conductivities of woven fabric composites, *Comp. A*, 29 (1998), 315-322.
- [13] J.M. Goyhénèche, *Modèles de conductivité apparente. Limites inférieure et supérieure de conductivité effective*, rapport CEA, LR/DMAT/SR2C, n°492 du 12/10/99, 26 p.
- [14] W.T. Perrins, D.R. McKenzie, R.C. McPhedran, Transport properties of regular arrays of cylinders, *Proc. R. Soc. Lond. A*, 369 (1979), 207-225.



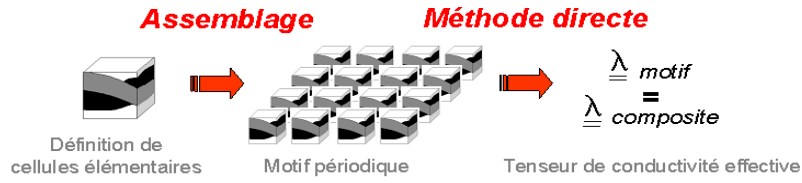


Figure 1 : Démarche de modélisation

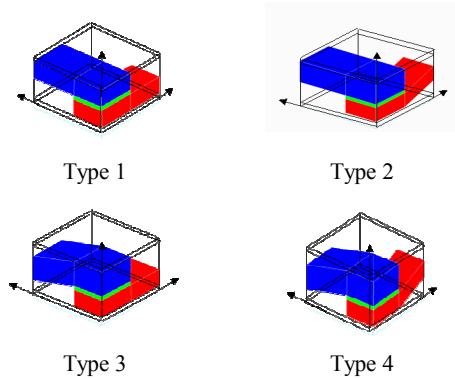


Figure 2 : 4 types de cellules génériques

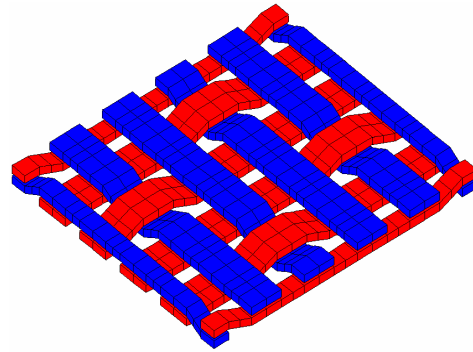


Figure 3 : Maillage des fils d'un satin 5-3

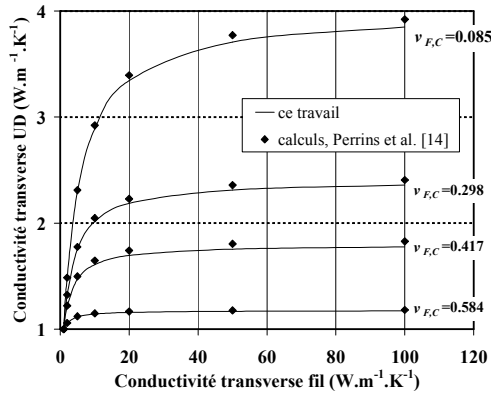


Figure 4 : Validation, cas du composite UD

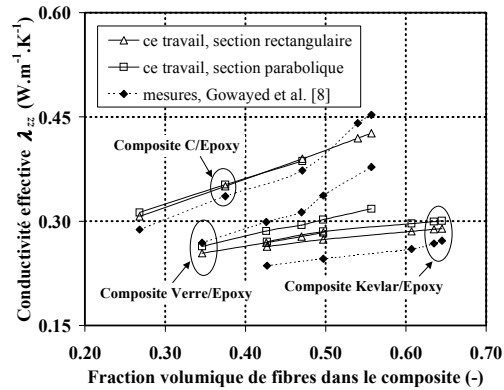


Figure 5 : Validation, cas du taffetas

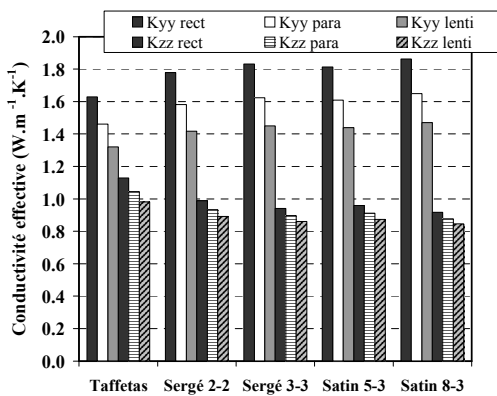


Figure 6 : Influence de l'architecture textile

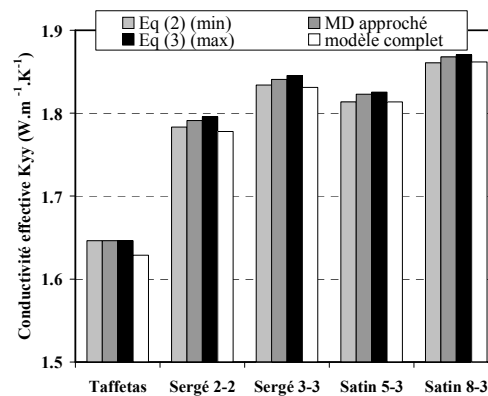


Figure 7 : Confrontation des modèles

# Annexe D

## Communication 2

**Multiscale model for the effective thermal conductivity  
computation of stratified woven fabric composite materials**

12<sup>th</sup> European Conference on Composite Materials  
*Biarritz, 29 août - 1<sup>er</sup> septembre 2006*



# MULTISCALE MODEL FOR THE EFFECTIVE THERMAL CONDUCTIVITY COMPUTATION OF STRATIFIED WOVEN FABRIC COMPOSITE MATERIALS

C. Lorrette\*, J.M. Goyh n che\*\* and R. Pailler\*

\*Laboratoire des Composites Thermostructuraux (LCTS)  
UMR 5801 (CNRS-SAFRAN-CEA-Universit  Bordeaux 1)  
3, all e de La Bo tie, F-33 600 PESSAC, France

\*\* Commissariat   l' nergie Atomique (CEA)  
CESTA, BP2, F33114 LE BARP, France  
lorrette@lcts.u-bordeaux1.fr

## ABSTRACT

This study presents a multiscale model which predicts the effective thermal conductivity tensor of stratified woven composite materials through three scalings. Starting with thermal conductivity components for the individual continuous fibres and matrix, a first numerical development based on microphotography is applied to predict the thermal properties of yarns. This article describes the employed methodology in the case of a carbon-resin UD composite. Then, a second development has been carried out to reach the thermal conductivity of laminates before deducing the composite conductivity tensor. The written program draws on different works calling for important assumptions. These are removed by suggesting a direct homogenization on a periodic pattern. The results were analysed to investigate the effect on the most widespread woven architectures as well as the fibre volume fractions on the effective thermal properties.

## NOTATION

$T$  Temperature, K

Greek symbols

$\lambda$  Thermal conductivity,  $W.m^{-1}.K^{-1}$

$\phi$  Density of heat flow,  $W.m^{-2}$

$\alpha$  Volume fraction

Subscript

L Laminates

Y Yarn

f Fibre

m Matrix

l Longitudinal direction along fibres

t Transverse direction orthogonal to fibres

$x, y$  Axis along warp and fill directions

$z$  Axis along laminate out-of-plane direction

## 1. INTRODUCTION

In recent years, considerable attention has been devoted to woven fabric composites. These fiber-reinforced materials are widely used in varied fields such as building, defence, transport and aerospace industry. The first motivation to develop these high performance composites has been about the improvement of mechanical properties. Thanks to a better bidirectional dimensional stability, 2D woven fabric composites present attractive advantages over the unidirectional composite like a high specific strength or a high resistance to impact damage. But most of them are needed for high thermal performance including their ability to withstand high temperature and for rapid heat removal. In particular, the thermostructural composites aim to resist to mechanical stresses usually under important thermal gradients at temperature ranging from 1000 to 3500 C. These materials, made up of carbon or ceramic fibers and matrix, essentially constitute advanced aerospace structure for which excellent thermo-mechanical properties are required.

Faced with such a demand, the woven fabric composites design requires the use of calculation tools being able to correctly predict their thermal properties. But the large number of parameters to consider as the weave style, the characteristic and the density of the different components or others factors introduced during weaving such as crimp

angle let the prediction be very fastidious. In order to achieve the prediction, the conventional method to determine the thermal conductivity of composite materials is based on a “*multiscale homogenization*” approach [1]. The different perception levels from the micrometer to the centimeter for these materials yields to realize three *scalings* : (i) the first consists in computing yarn conductivity from thermal data of both the elementary constituent fibres and matrix, (ii) the second scaling concerns the integration of the yarns and matrix to determine the laminates conductivity and lastly (iii) the third scaling ends up at the conductivity of the stratified composite from previous characteristics of laminates.

According to the above-mentioned scheme, this work proposes a complete prediction of the effective thermal conductivity tensor for the stratified woven composites. Starting with thermal conductivity components for the individual continuous fibres and surrounding matrix, a numerical method based on micro-photographs of materials has been applied to realise the first scaling. This paper describes the employed methodology in the case of a carbon/epoxy resin UD composite. As the second scaling is concerned, the homogenization is performed by the use of a three dimensional finite elements analysis on periodic patterns. The results were analysed to investigate the effect of the different woven architectures as well as the fibre volume fractions on the thermal properties ; parametric study was conducted with this aim in view. Finally, the conductivity tensor of the stratified composites could be obtained by analytical relations.

## 2. HOMOGENIZATION SCHEME

The strategy of the homogenization brought here uses a direct method to express the macroscopic variations of the wanted property. Considering a purely conductive heat transfer, the processing scheme exploits a strict separation of the different observation scales through three independent models. For the entire set of scales, the formalism governing the heat transport remains actually the same. It becomes convenient then to deal with the local variations of fibres orientation, their irregular morphology for instance or to consider the thermal phenomena encountered at the interface between yarns and matrix at once.

### 2.1-The 1<sup>st</sup> scaling : from fibres to yarns

If the longitudinal component of the yarn thermal conductivity can be obtained by the classical rule of mixture:

$$\lambda_{y,l} = \alpha_{f,y} \lambda_f + (1 - \alpha_{f,l}) \lambda_m$$

the transverse component  $\lambda_{y,t}$  is more complicated to determine. Several methods (analytic exact, approximated, etc) can be used in the case of isotropic fibres and generally lead to similar results as much as fibre volume fraction remains below 60 % [2-4]. These calculations are also well adapted when the distribution and the morphology of the fibres are regular. For higher fibre volume fraction, the transverse conductivity could be determined by a direct resolution of the thermal problem on a representing microphotograph that was performed in this work.

The direction to follow is given here. After a first image pre-processing to correctly separate fibres from matrix, the micrographs were digitized in a binary black and white image for both of the phases. Two distinct thermal conductivities  $\lambda_f$  and  $\lambda_m$  were then affected to each colour in order to define a conductivity field varying as a function of the plane co-ordinates. A finite element computation was finally carried out on a

representing elementary volume of the material (R.E.V.) for which a special attention has to be assigned like it will be illustrated later. Two “numerical experiments” are necessary to determine the whole conductivity tensor. These consist in successively applying a thermal gradient of temperature in the two space directions (figure 1). A « hot » temperature  $T_H = 1$  is imposed on one boundary of the medium, a « cold » temperature

$T_C = 0$  is imposed on the opposite boundary, the other boundary conditions are determined from periodicity conditions. The components are deduced by an average taking of the heat flow and the thermal gradient thanks to the following relations.

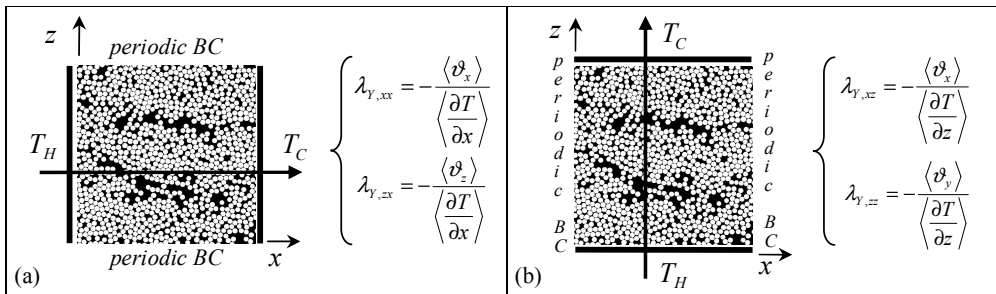


Figure 1 : Thermal conductivity computation of yarns from 2D image –  
The thermal gradient is imposed in (a) x-axis and (b) z-axis

## 2.2- The 2<sup>nd</sup> scaling : from yarns to laminates

As far as this scaling is concerned, agreements between the currently available models in the literature are often imperfect. Most of them exploit the periodicity of the woven fabric architecture to isolate a representative unit cell and generate bounds to predict conductivity. But the main reason to explain the difference is certainly due to the degree of accuracy taken into account by the models in the geometrical description of the yarns and the composite architecture.

Ning and Chou [5,6] predict the in-plane effective thermal conductivities of woven fabric composites with a model based on a thermal-electrical analogy. Thus, they developed a thermal resistance network in one heat transfer direction. Yet, the approach stays simplistic because of the impossibility to consider the exact yarn cross-sectional geometry or the possible anisotropic nature of the yarns. At the opposite, Dasgupta et al. [7] and other authors [8,9] prefer to develop numerical finite elements analysis. Their models use homogenization of 2 or 3 dimensional hardness-weave architecture with a generally good representation. In this case, the numerical developments are consequent and the predictions depend on the quality of the mesh. Computation times are often very long.

In this work, the developed homogenization uses the three dimensional finite elements method (CAST3M). It suggests to continue the previous studies in different directions :

- (i) The geometric description is simplified but stays more realistic than the electrical model and less heavy to develop than Dasgupta’s model.
- (ii) The warp and the fill yarns are orthotropic ( $\lambda_{y,t}, \lambda_{y,t}$ ) with an isotropic matrix ( $\lambda_m$ ).
- (iii) The yarn cross sectional geometry can be rectangular, parabolic or lenticular. Moreover, some practical functionalities such as consideration of thermal contact resistance between yarns and laminates are added.

- (iv) Automatic mesh generation capability is developed for varying values of the dimensional parameters.
- (v) The model is sufficiently versatile to be automatically applied on different styles of weaves (Satin, plain-weave serge, etc.)

To define the geometry, the first step consists in building 32 unit cells from 4 generic cells by symmetrical and rotational operations. Each element, enclosing a piece of the warp and the fill yarns as well as surrounding matrix, is then joined in order to reconstitute the smallest periodic volume of the fabric weave. By a similar approach of the yarn scaling, the thermal conductivity tensor of the laminate is obtained from three numerically experiments on the characteristic periodic pattern. In this case, the two weaving directions and the orthogonal plan direction define the three main directions of the tensor ( $\lambda_{xx}, \lambda_{yy}, \lambda_{zz}$ ). The finite element model of the 4 generic unit cell with geometrical parameters are shown at fig.2 and fig. 3. As example, figure 4 exhibits the meshing of the « 2-2 twill weave » periodic pattern with the associated matrix.

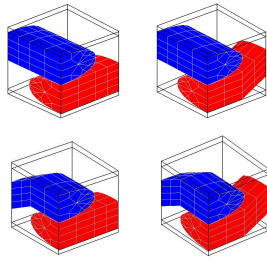


Figure 2 : Generic unit cells for parabolic cross section

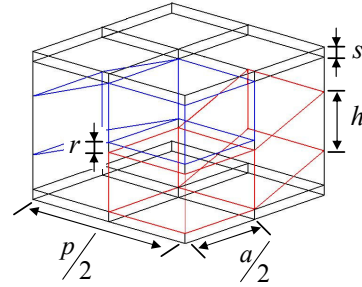


Figure 3 : Geometric parameters of the warp and fill yarns in a unit cell

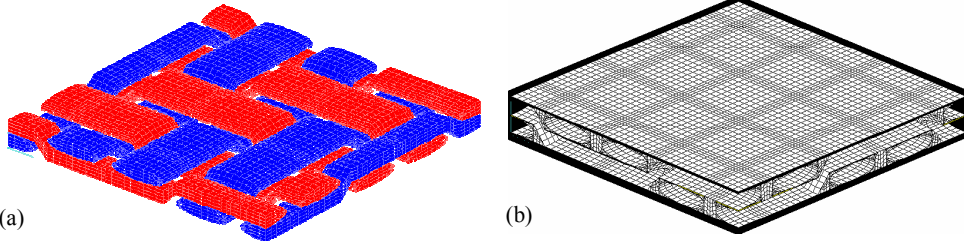


Figure 4 : Example of automatic meshing generated for (a) the « 2-2 twill weave » with parabolic yarn cross section and (b) the associated matrix

The model was validated in previous works[10]

### 2.3- The 3<sup>rd</sup> scaling : from laminates to stratified composites

Considering a composite constructed by stacking  $N$  different laminates  $i$  with an orientation angle  $\theta_i$  between laminate axis and composite axis, the conductivity tensor of the stratified woven fabric composites is deduced from previous determinations by the analytical relation:

$$\underline{\lambda}_E = \begin{bmatrix} \frac{\sum_{i=1}^N e_i \lambda_{i,xx}}{\sum_{i=1}^N e_i} & \frac{\sum_{i=1}^N e_i \lambda_{i,xy}}{\sum_{i=1}^N e_i} & 0 \\ \frac{\sum_{i=1}^N e_i \lambda_{i,xy}}{\sum_{i=1}^N e_i} & \frac{\sum_{i=1}^N e_i \lambda_{i,yy}}{\sum_{i=1}^N e_i} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\sum_{i=1}^N e_i}{\sum_{i=1}^N \frac{e_i}{\lambda_{i,zz}}} \end{bmatrix}$$

where  $e_i$  is the thickness of the laminate and  $\underline{\lambda}_i$  the thermal conductivity tensor of the laminates in the composite axis. Moreover, if the plies aren't disoriented from each others and if their thicknesses are the same, then the conductivity of the composite is equal to the conductivity of the laminate. It is the case of the application dealt with in this work (3.2).

### 3. APPLICATIONS

#### 3.1- Thermal conductivity of a UD composite

The first scaling model is used to predict the in-plane thermal conductivities of a carbon-resin UD composite. The transverse and longitudinal conductivity of the ex-PAN fibres are obtained from the HEXCEL manufacturer's literature:  $\lambda_l = 6.83W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$  and  $\lambda_t = 1.19W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ . The thermal conductivity of the isotropic matrix is  $\lambda_m = 0.22W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ .

**DETERMINATION OF THE R.E.V** – To determine the dimensions of the *representative elementary volume* of the UD composite, conductivity pre-computations are performed on growing domains as illustrated in figure 4(a). The results reported on a graph as a function of the various swept dimensions converge as soon as the calculation domain is sufficiently large. Obviously, we could then admit the domain representative of the material as a whole.

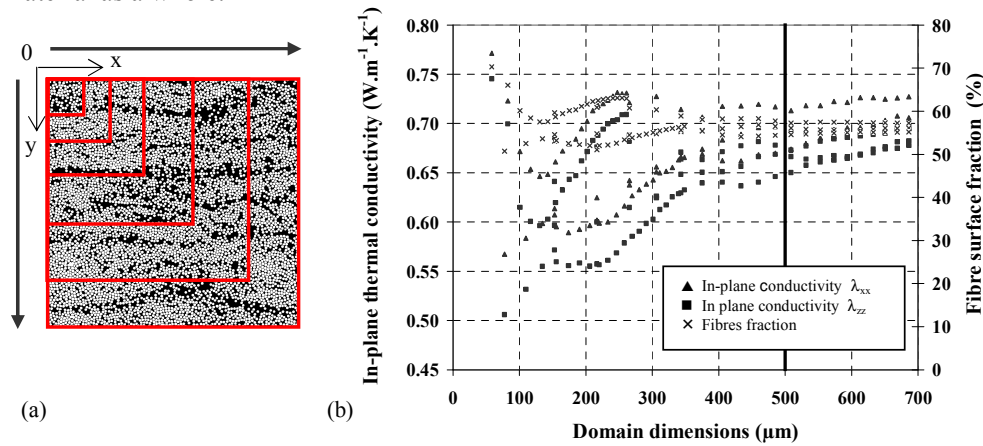


Figure 5 : (a) Determination of the V.E.R on 1024 × 1024 pixels image (0.67 μm/pixels) – (b) Evolution of the in-plane conductivity and surface fibre fraction as a function of the domain dimension

For this application, the work was performed for many sizes of images included between 100 and 700 μm on side. Moreover, the operation was identically repeated on different regions of the material, the computed in-plane conductivities are reported on the graph shown on fig.4(b). The fibre volume fractions associated to the calculation domain are mentioned as well.

The first observation concerns the distribution of the conductivity values. In agreement with our expectations, the calculated conductivities are dispersed for the small size images. Oppositely, the deviations become closer up to stabilization for the larger domains. The small difference between  $\lambda_{xx}$  and  $\lambda_{yy}$  components indicates an anisotropic tendency of the material. In fact, the density of fibres is more consequent on



x-axis than y-axis. Finally, the V.E.R. dimension for the calculation is a square of 500  $\mu\text{m}$  side.

**MESH CONVERGENCE** – The mesh density was selected after a series of mesh convergence studies. As can be seen in the following graph (fig.5), the conductivity was plotted as a function of the sharpness of the mesh to determine the best accuracy for calculations. A numerical tolerance of 0.02 % was considered here like acceptable. It generates an error on the conductivity lower than 1 %.

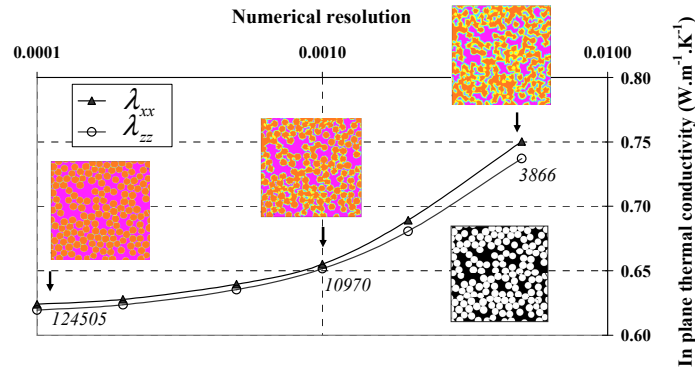


Figure 6 : Mesh convergence study on a 100  $\mu\text{m}$  size image – Representation of the affected conductivity field to the microphotograph with nodes number versus numerical resolutions

**RESULTS** – Calculations are carried out on about twenty independent images randomly chosen. The obtained results lead to the average effective in-plane conductivities with associated deviation. The following table summarizes the results of the present prediction and proposes the comparison with experimental measurements coming from two French laboratories LEMTA-Nancy (B.Remy, A.Degiovanni) and CEA-LeRipault-Monts (D.Rochais). A good agreement is observed between numerical and experimental results. The  $\lambda_{xx}$  component is included between both compared values,  $\lambda_{zz}$  component stays however slightly below. The average discrepancy is 2% with the LEMTA measurements and about 3 to 6 % with the CEA.

Table 1 – Numerical results and comparison with experimental measurements

	Num. model	Meas. LEMTA	Dev (%)	Meas. CEALeRipault	Dev (%)
Thermal diffusivity $\alpha_{xx} \times 10^7 (\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$	-	4,50	-	4,89	-
Thermal diffusivity $\alpha_{zz} \times 10^7 (\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$	-	4,50	-	4,55	-
Thermal conductivity $\lambda_{xx} (\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$	$0.634 \pm 0.016$	0,621	2,05	0,675	6,07
Thermal conductivity $\lambda_{zz} (\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$	$0.607 \pm 0.015$	0,621	2,25	0,628	3,34

(\*) Computing from data :  $\rho_{\text{UD}} = 1530 \text{ Kg} \cdot \text{m}^{-3}$  and  $c_p = 902.5 \text{ JKg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$

### 3.2- Thermal conductivity of stratified woven fabric composites

Laminate effective out-of-the plane thermal conductivities are predicted as a function of the fibre volume fraction by solving the thermal problem with the second scaling model. A plain weave composite constituted of kevlar, carbon or glass fibres and epoxy resin is here considered. Experimental data are proposed by Gowayed et al[11]. In order to compare and contrast our results with those from the literature, it is assumed that the weaving parameters stay constant. Figure 7 illustrated the effect of the fibre volume fraction on the out-of-the plane thermal effective conductivities for two yarn cross sections. For all the composites, the conductivity seems to increase almost linearly with the fibre content. Globally, a good correlation is observed between our model and the measures.

In a second time, a parametric study is performed to investigate the effect of the fabric weave as well as the yarn cross section on the effective thermal properties. The second scaling model proposes to compare the thermal conductivity computed in the plane ( $\lambda_{yy}$ ) and orthogonal to the plane ( $\lambda_{zz}$ ) of the laminates for the most widespread woven architectures. Calculations were carried out with the following data: weaving period 0.44 mm, yarn width 0.35 mm, yarn height 0.15 mm, thickness of matrix between laminates  $2.5 \times 10^{-3}$  mm, between yarns  $7.1 \times 10^{-3}$  mm. The yarn longitudinal and transverse conductivity are respectively  $3.76 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  and  $0.89 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ . As for the isotropic matrix, affected conductivity is  $0.72 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ . Figure 6 illustrates the obtained results, these show that: (i)  $\lambda_{yy}$  decreases when the number of crimp raises and inversely for  $\lambda_{zz}$ . It proves the important part of the heat transfer in the titled yarns. (ii)  $\lambda_{yy}$  and  $\lambda_{zz}$  decrease when the type of the yarn cross sections lead to a lower fibre volume fraction, 0.764 if rectangular, 0.642 if parabolic and 0.501 if lenticular. According to the previous investigation, the result reveals the important part of the volume fraction in the heat transfer.

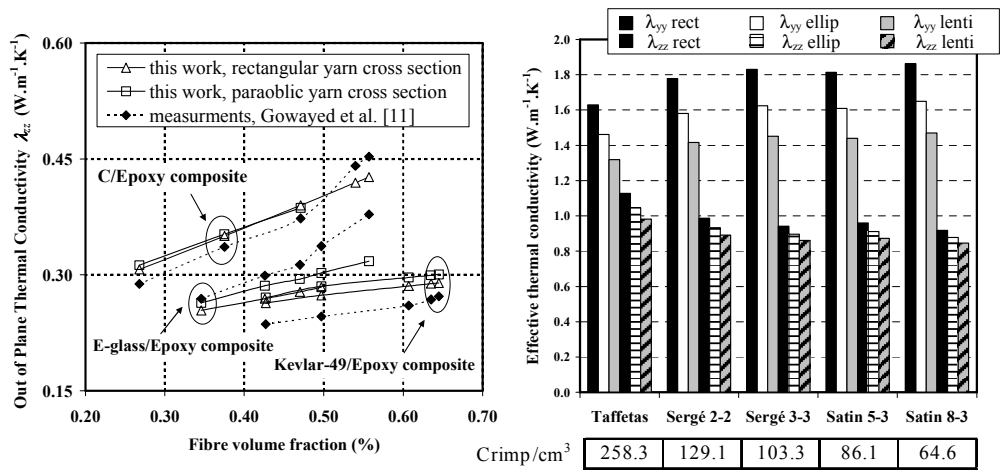


Figure 7 : Influence of the fibre volume fraction on the out-of-the plane conductivity for plain weave composites

Figure 8 : Influence of the fabric weave with different yarn cross section

#### 4. CONCLUSION

A general multiscale model using a direct homogenization to determine the thermal properties of stratified woven fabric composite has been established in this work. It provides a useful tool for the selection of weave patterns, constituent materials and geometric parameters for desired fabric composites. It can be easily incorporated into the design optimization of composite thermal properties.

#### ACKNOWLEDGMENTS

This research was supported by the Commissariat à l’Energie Atomique - LeRipault.

#### REFERENCES

- 1- **Goyhénèche J.M. et al**, “Modélisation thermique des composites thermostructuraux,” Congrès Français de Thermique, SFT 2004, Presqu’île de Giens, 25-28 mai 2004.
- 2- **Rayleigh L**, “On the influence of obstacles arranged in rectangular order upon the properties of a medium,” *Phil. Mag.* **34** (1892) 481-507.
- 3- **Berhens E.**, “Thermal conductivity of composite materials,” *J.of Comp. Mater.* **2** (1968), 2.
- 4- **Pilling M.W. et al**, “The thermal conductivity of carbon fiber – reinforced composites,” *J. of Mater. Sc.* **14** (1979), 1326-1338.
- 5- **Ning Q.G. and Chou T.W.**, “Closed-form solutions of the in-plane effective thermal conductivities of woven fabric composites,” *Comp. Sc. and Tech.* **55** (1995) 41-48.
- 6- **Ning Q.G. and Chou T.W.**, “A general analytical model for predicting the transverse effective thermal conductivities of woven fabric composites,” *Composites Part A* **29A** (1998) 315-322.
- 7- **Dasgupta et al.**, “Three-dimensional modeling of woven-fabric composites for effective thermo-mechanical and thermal properties,” *Comp. Sc. and Tech.* **56** (1996) 209-223.
- 8- **Woo K. and Goo N.S.**, “Thermal conductivity of carbon-phenolic 8-hardness satin weave composites,” *Comp. Stru.* **66** (2004) 521-526.
- 9- **Bigaud D. et al.**, “A global-local non-linear modelling of effective thermal conductivity tensor of textile-reinforced composite,” *Composite: Part A* **32** (2001) 1443-1453.
- 10- **Lorrette C. et al**, “Modélisation de la conductivité thermique des composites à renforts textiles : homogénéisation par éléments finis sur un motif périodique complet, ” Congrès Français de Thermique, SFT 2005, Reims, 30 mai – 02 juin 2005.
- 11- **Gowayed et al.**, “Thermal conductivity of composite materials made from plain weaves and 3D weaves, ” *Comp. Eng.*, **5** (9)(1995), 1977-1986.