



**HAL**  
open science

# Predictin of the thermoelastic properties of an injection molded short-fiber composite

Delphine Dray Bensahkoun

► **To cite this version:**

Delphine Dray Bensahkoun. Predictin of the thermoelastic properties of an injection molded short-fiber composite. Engineering Sciences [physics]. Arts et Métiers ParisTech, 2006. English. NNT : 2006ENAM0008 . pastel-00001776

**HAL Id: pastel-00001776**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00001776>**

Submitted on 9 Jun 2006

**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.

**Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers**  
**Centre de Paris**

**THÈSE**

présentée pour obtenir le grade de

**DOCTEUR**  
de  
**L'ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEURE**  
**D'ARTS ET MÉTIERS**

Spécialité : Mécanique et Matériaux

par

**Delphine DRAY BENSAHKOUN**

---

**PREDICTION DES PROPRIETES THERMO-ELASTIQUES**  
**D'UN COMPOSITE INJECTE ET CHARGE DE FIBRES COURTES**

---

*Soutenue le 10 mars 2006 devant le jury composé de*

M. A.	DRAGON	Directeur de recherche à l'ENSMA de Poitiers	Président
M. M.	VINCENT	Directeur de recherche à l'Ecole des Mines de Paris	Rapporteur
M. I.	DOGHRI	Professeur à l'Université Catholique de Louvain	Rapporteur
M. G.	REGNIER	Professeur à l'ENSAM de Paris	Directeur de thèse
M. P.	GILORMINI	Directeur de recherche à l'ENSAM de Paris	Examineur
M. F.	SCHMIDT	Professeur à l'Ecole des Mines d'Albi	Examineur
M. J.M.	ROSSIGNOL	Ingénieur de Recherche, LEGRAND	Invité

---



*A ma mère,  
A mon père,  
A Thierry.*



## REMERCIEMENTS

---

De nombreuses personnes ont contribué au bon déroulement de cette thèse et je tiens à toutes les remercier.

Tout d'abord, merci à Jean-Michel Rossignol de m'avoir fait confiance, il y a 3 ans, en me confiant ce travail de thèse en collaboration avec LEGRAND. Je remercie également son successeur, Joachim Correa, de s'être impliqué dans le projet FISH alors qu'il était déjà bien avancé.

Merci à Gilles d'avoir encadré ma thèse de la façon dont il l'a fait : la confiance grandissante qu'il m'a témoignée au fur et à mesure du déroulement du projet m'a apporté de plus en plus d'assurance. Je garderais toujours de très bons souvenirs de nos réunions en anglais...son accent me faisait beaucoup rire au début, mais je dois reconnaître qu'il a beaucoup progressé.

Merci à Pierre Gilormini pour sa précieuse aide et ses conseils pertinents, notamment quand je désespérais avec mes modèles d'homogénéisation. Merci également pour sa gentillesse, ses blagues et la modestie dont il a toujours fait preuve...

Je remercie Monsieur Dragon de m'avoir fait l'honneur d'être Président du jury de ma thèse ; Monsieur Doghri et Monsieur Vincent d'avoir accepté la fonction de rapporteurs ; Monsieur Schmidt d'avoir été membre du jury. Merci pour l'intérêt que vous avez montré à mes travaux et pour vos regards critiques.

Concernant le Technocentre de Legrand, merci à Michel Laplanche pour son aide lors des simulations. Merci à Elizabeth, Olivier et Lissa pour leur chaleureux accueil à Limoges.

Je remercie également toutes les personnes du LIM, désormais sous la direction de Monsieur Bretheau, que j'ai côtoyées et avec qui j'ai travaillé. Merci à Monsieur Verdu de partager ses connaissances avec une extrême gentillesse. Je pense aussi à Paulo, qui m'a initiée au procédé d'injection et qui m'a fait découvrir les étoiles au karting ! Je pense à mes co-bureaux, avec qui j'ai passé le plus de temps : Célia, qui m'a fait beaucoup rire avec toutes ses histoires ; Fahmi, à qui je ne manquerai pas de faire un gros chèque avant de quitter le labo ; Rennan, avec qui j'ai passé de très bons moments hors du labo ; et Sallah, que je connais peu du fait de son arrivée tardive, mais que j'apprécie déjà beaucoup. Merci aussi à Cédric pour les soirées très « spéciales » qu'on a passées ensemble. Merci à Véronique pour ses encouragements et nos nombreuses discussions...

Merci à tous les partenaires du projet FISH : Peter et Rong, j'ai beaucoup apprécié de travailler avec des personnes compétentes comme vous ! Merci aussi de m'offrir la possibilité de partir en Australie...Merci à Vito pour la qualité de ses conseils, sa disponibilité et ses compliments encourageants après chaque réunion (et même après la soutenance !) Je remercie également René, Sophie, Didier et Ronnan pour leur contribution au projet et nos discussions très enrichissantes.

Enfin, je tiens à remercier mes proches : merci à mes parents pour leur soutien inégalable ; merci à Thierry de m'avoir toujours encouragée, même dans les moments de doute. Je remercie également Sandra, Charly, Shana, Jordan et toute ma belle-famille, ainsi que mes amis venus de Lyon, Marseille, Toulouse, Bordeaux...pour leur présence à ma soutenance : je sais que vous n'avez pas tout compris, mais je ne m'imaginai pas passer ce moment sans vous. Bref, merci d'avoir été là et d'avoir été si patients !

Une expérience formidable de 3 ans s'achève donc ici. J'espère néanmoins que nous garderons des rapports amicaux bien au-delà de cette période...



# Sommaire

<b>INTRODUCTION</b>	<b>1</b>
---------------------	----------

## **PARTIE 1 : DETERMINATION DE L'ORIENTATION DES FIBRES DANS UNE PIECE INJECTEE**

---

<b>1. Les méthodes de mesures, état de l'art</b>	<b>9</b>
1.1 Représentation de l'état d'orientation	9
a) Fonctions d'orientation	10
b) Fonctions de distribution d'orientation	12
c) Tenseurs d'orientation	14
1.2 Les techniques de mesure	16
1.2.1 Microscopie en réflexion	16
a) Principe	16
b) Détermination de la distribution spatiale d'orientation	18
c) Facteur correctif	20
1.2.2 Les autres méthodologies	22
<b>2. Choix des matériaux et préparation des échantillons</b>	<b>23</b>
2.1 Choix et caractérisation des matériaux	24
a) Choix des matériaux	24
b) Caractérisation des matériaux	25
2.2 Préparation des échantillons	26
a) Conditions d'injection	26
b) Préparation des échantillons	28
<b>3. Mesure expérimentale de la distribution 3D d'orientation d'un échantillon injecté</b>	<b>30</b>
3.1 Protocole expérimental	30
a) Mise au point de la méthode	31
b) Validation du programme sur des images de référence	34
3.2 Résultats par coupe orthogonale	36
a) IXEF 1002 – plaque de 1 mm d'épaisseur	37
b) IXEF 1002 – plaque de 3 mm d'épaisseur	38
c) IXEF 1022 – plaque de 3 mm d'épaisseur	39
d) Synthèse	40



3.3 Mise au point d'une nouvelle méthode par coupe inclinée	41
a) Avantage et principe de la coupe à 45° dans l'épaisseur	43
b) Protocole expérimental	45
c) Résultats	46
3.4 Synthèse sur la détermination de l'orientation spatiale des fibres	51
<b>4. Prédiction de l'orientation des fibres</b>	<b>52</b>
<b>Références bibliographiques de la Partie 1</b>	<b>59</b>

## **CHAPITRE 2 : EVALUATION DES PROPRIETES THERMO-ELASTIQUES; PREDICTIONS ET MESURES**

---

<b>1. Les modèles micro-mécaniques</b>	<b>65</b>
1.1 Préliminaires	65
1.2 Les techniques d'homogénéisation en thermo-élasticité	69
1.2.1 En élasticité	69
a) Cas d'un composite biphasé unidirectionnel	69
b) Cas d'un composite contenant plus de deux phases	76
c) Prise en compte de l'orientation	78
1.2.2 En thermo-élasticité	80
1.3 Les modèles développés	83
a) Choix du modèle	83
b) Remarques sur les conditions de validité du modèle de Mori-Tanaka	84
c) Les modèles utilisés en élasticité	85
i) Méthode directe de Mori-Tanaka	86
ii) Procédure en deux étapes	89
iii) Synthèse	93
d) Les modèles utilisés en thermo-élasticité	94
<b>2. Caractérisation thermo-mécanique : essais et mesures</b>	<b>97</b>
2.1 Essais thermo-mécaniques	97
a) Essais de traction	97
b) Essais de rhéologie	99
c) Données PVT (Pression – Volume spécifique – Température)	100
d) Dilatométrie	101
2.2 Propriétés des constituants	102
a) Propriétés des fibres	102
b) Propriétés thermo-élastiques de la matrice	103

2.3 Propriétés macroscopiques des composites injectés	110
a) Grade 1002 – plaque de 1 mm d'épaisseur	113
b) Grade 1002 – plaque de 3 mm d'épaisseur	114
c) Grade 1022 – plaque de 1 mm d'épaisseur	115
d) Grade 1022 – plaque de 3 mm d'épaisseur	115
<b>3. Confrontation modèles / expériences</b>	<b>117</b>
3.1 Comparaison des différentes approches	118
a) Cas du grade 1002 – plaque de 1 mm d'épaisseur	118
b) Cas du grade 1002 – plaque de 3 mm d'épaisseur	125
c) Cas du grade 1022	127
d) Synthèse	137
3.2 Validation de la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités	138
a) Cas du grade 1002	138
b) Cas du grade 1022	142
c) Synthèse	143
3.3 Amélioration de l'estimation du tenseur d'orientation d'ordre 4	146
a) Principe	146
b) Application au grade 1002 injecté	149
c) Synthèse	156
<b>Références bibliographiques de la Partie 2</b>	<b>159</b>
<b>CONCLUSIONS</b>	<b>167</b>
<b>PERSPECTIVES</b>	<b>171</b>
<b>Annexe 1</b>	<b>173</b>
<b>Annexe 2</b>	<b>179</b>
<b>Annexe 3</b>	<b>181</b>
<b>Annexe 4</b>	<b>183</b>



# INTRODUCTION

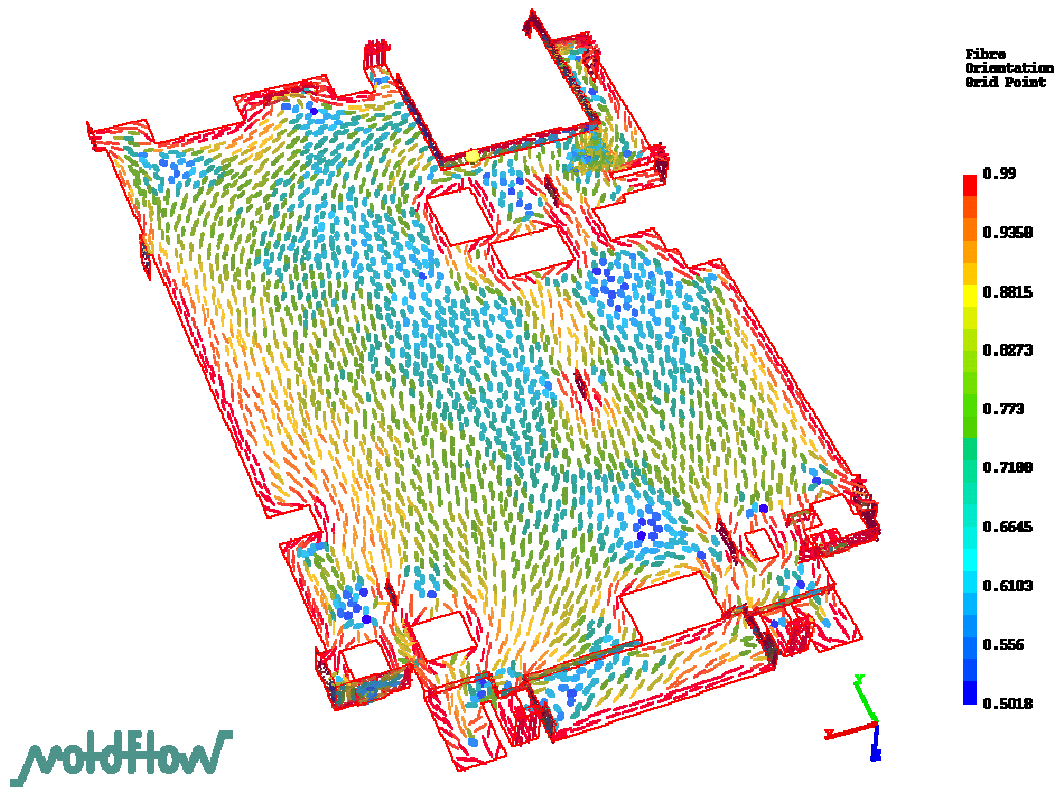
---

Les matériaux composites à matrice organique constituent une classe importante de matériaux dits techniques, du fait de leur rapport rigidité sur poids très avantageux. Sous la forme de stratifiés, ils sont largement employés dans l'aéronautique, le spatial ou les technologies de pointe. Les thermoplastiques renforcés de minéraux (tels que les fibres de verre ou le talc) sont une autre classe de matériaux composites, également très utilisés, car la présence de renforts permet d'améliorer les propriétés mécaniques de la matrice, particulièrement sa rigidité et sa contrainte à la rupture. C'est ainsi qu'un polypropylène pur ayant un module d'environ 1.4GPa et une contrainte à la rupture d'environ 27MPa, voit ses propriétés augmenter de manière spectaculaire lorsqu'il est chargé : un ajout de 40% en poids de fibres de verre permet presque de tripler à la fois le module d'élasticité et la contrainte à la rupture, qui atteignent respectivement 4GPa et 80MPa. Au-delà de l'amélioration des propriétés mécaniques, ces composites sont intéressants d'un point de vue industriel puisqu'ils allient à la légèreté, des faibles coûts de fabrication et une grande facilité de mise en oeuvre ; c'est la raison pour laquelle ils sont employés dans de très nombreuses applications, tels que les appareils ménagers et électriques ou dans les transports.

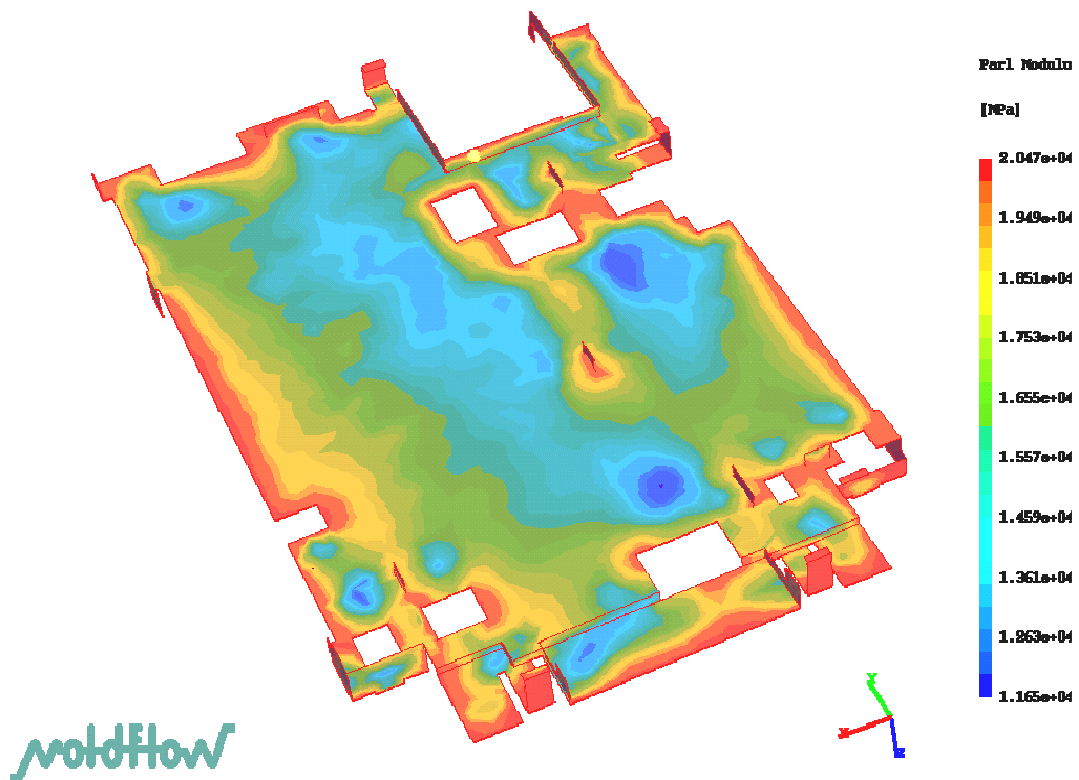
Très souvent des pièces de géométrie complexe doivent être fabriquées et le procédé de mise en forme par injection, qui est un procédé de production de grande série largement utilisé dans le milieu industriel, est particulièrement approprié à ce type de matériaux.

Lors de la mise en forme, la répartition des renforts est fortement influencée par l'écoulement, comme le montre la Figure 1, qui représente la distribution locale en peau de fibres courtes dans une pièce injectée en polyarylamide chargé de fibre de verre à 50% en poids. On constate en l'occurrence que lors de l'injection de composites chargés de fibres, celles-ci tendent à s'orienter de manière anisotrope dans la pièce.

Il en résulte que même si les constituants (matrice et renfort) sont isotropes, les propriétés du composite, qui dépendent de l'orientation des renforts, varient de manière anisotrope dans la pièce : c'est le cas des rigidités, des coefficients de dilatation thermique ou encore de la conductivité thermique [Kamal et Moy, 1981 ; Dunn et Ledbetter, 2000]. La Figure 2 représente localement les variations du module d'Young dans la direction principale d'orientation des fibres, dans le cas d'un châssis injecté (même matériau que l'exemple précédent de la Figure 1).



**Figure 1 :** prédiction de la répartition en peau des fibres de verre dans un châssis injecté en polyarylamide chargé à 50% de fibres de verre (Calcul effectué par Solvay)

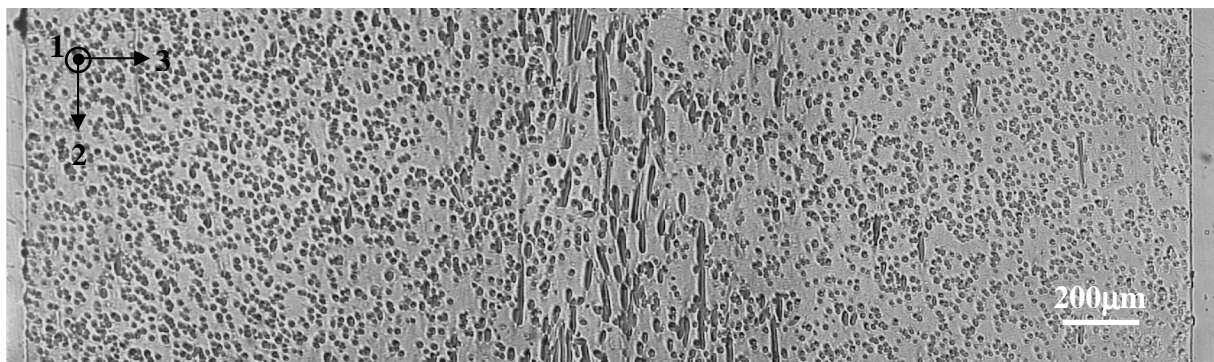


**Figure 2 :** prédiction des variations du module d'Young dans la direction principale d'orientation des fibres dans un chassis injecté en polyarylamide chargé à 50% de fibres de verre (Calcul effectué par Solvay)

Ce type de matériaux chargés est de plus en plus utilisé dans des applications structurelles : c'est ainsi par exemple que les faces avant automobiles qui referment la caisse des véhicules, et qui jusqu'à maintenant étaient fabriquées en tôle d'acier embouties soudées, sont des nouvelles pièces fabriquées en thermoplastique renforcé de fibres. Mais du fait de l'anisotropie de répartition des renforts et par conséquent de l'anisotropie des propriétés mécaniques, qui résultent de la mise en oeuvre, il y a une nécessité de prédire précisément l'orientation des fibres, ainsi que les propriétés mécaniques qui en découlent.

### Orientation des fibres dans les pièces injectées

Tadmor [1974] a décrit précisément l'écoulement d'un polymère entre des parois fixes. Au niveau du front de matière, l'écoulement est légèrement divergent à cause de la différence de vitesse entre le cœur et la surface du moule, et aussi à cause du front de solidification qui s'épaissit avec le temps et se déplace de la surface vers le cœur. Cet écoulement porte le nom d'effet fontaine ; il induit une structure particulière dans l'épaisseur, car les fibres auront tendance à s'orienter perpendiculairement à la direction d'écoulement au cœur [Vincent et Agassant, 1986 ; Singh et Kamal, 1989]. La Figure 3 représente la répartition de fibres courtes de verre dans l'épaisseur (3 mm) d'une plaque carrée (60x60 mm<sup>2</sup>) injectée, l'axe 3 correspondant à l'épaisseur. On observe bien la tendance des fibres à s'orienter dans le sens de l'écoulement (axe 1) en surface et au contraire dans le transverse (axe 2) au cœur. On en conclut que même pour des pièces de géométrie simple, la répartition des fibres est hétérogène dans l'épaisseur.



**Figure 3** : répartition des fibres de verre (30% en poids) dans les 3 mm d'épaisseur , au centre d'une plaque carrée en polyarylamide injectée

Les conditions de procédé vont également jouer sur la répartition des fibres dans l'épaisseur en accentuant le phénomène vu précédemment. Un cycle de moulage par injection peut se décomposer en deux phases principales :

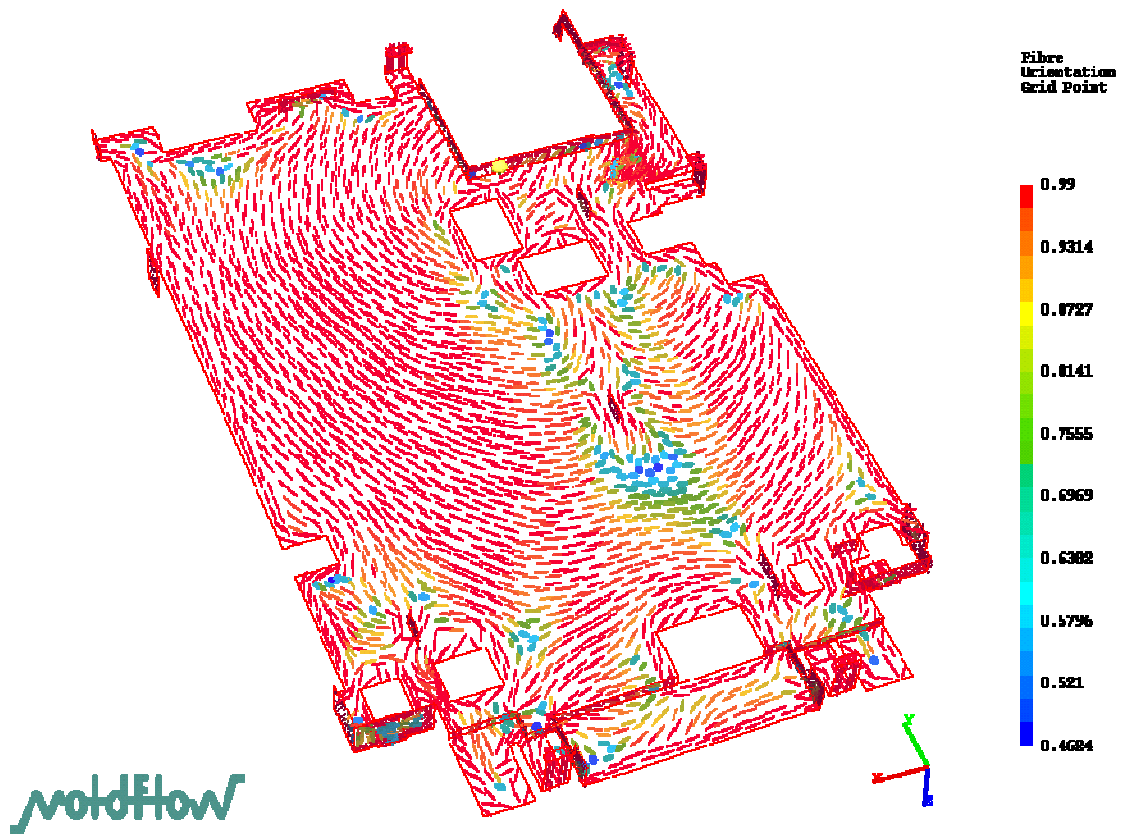
- la phase de remplissage qui ne dure que quelques secondes et pendant laquelle une couche de 0.2 à 0.4 mm va se solidifier sous un fort cisaillement,
- la phase de post-remplissage, qui maintenue jusqu'à la solidification du seuil d'injection, engendre un post-remplissage, dont le but est de compenser les retraits thermiques du polymère qui se refroidit. Ces retraits seront d'autant plus grands que la matrice polymère est semi-cristalline.

On comprend donc l'importance du post-remplissage, qui gouverne les dimensions finales de la pièce mais qui modifie aussi l'orientation des renforts, surtout à cœur. Finalement, on observe dans la plupart des cas une première couche en peau où les fibres sont alignées dans la direction d'écoulement et une 2<sup>ème</sup> couche au centre où les fibres sont orientées transversalement [Karger-Koicis, 1989 ; Bailey et Rzepka, 1991].

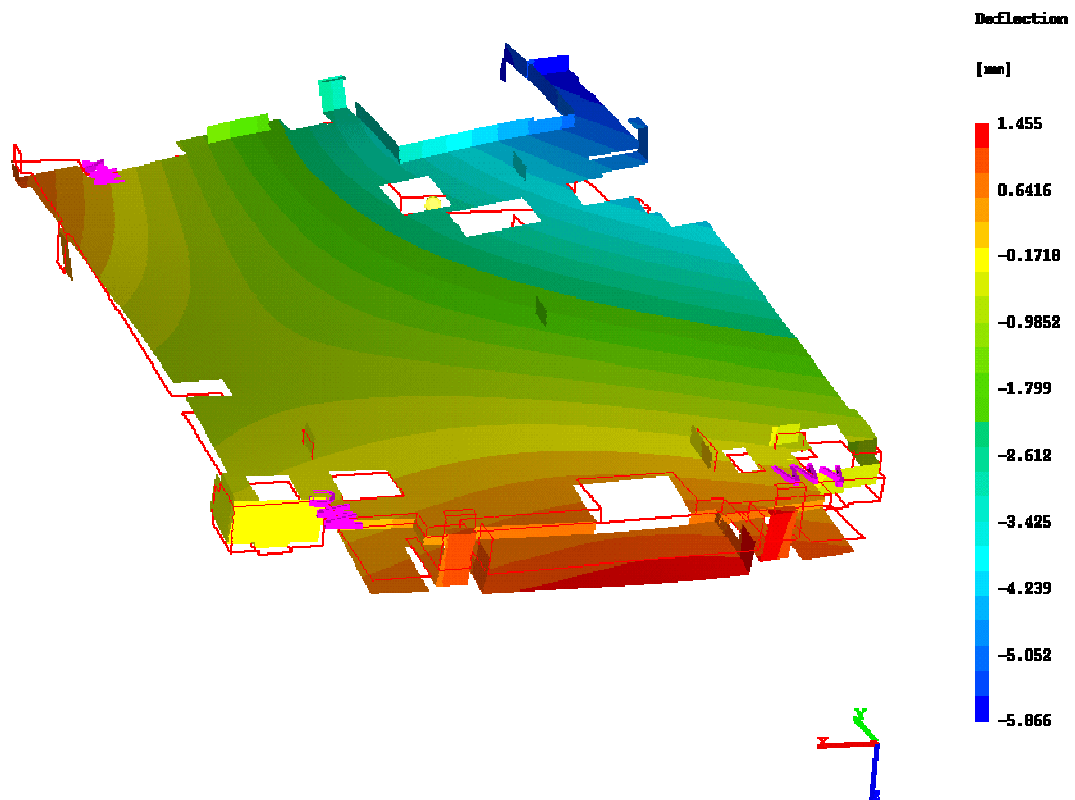
Jeffery [1922] a dérivé l'équation de mouvement d'une particule ellipsoïdale immergée dans un fluide Newtonien : il est à la base des recherches sur la prédiction de l'orientation des renforts. Folgar et Tucker [1984] ont ajouté un terme de diffusion à l'équation de Jeffery, afin de prendre en compte l'interaction entre renforts. Advani et Tucker [1987] ont développé des équations décrivant l'évolution des tenseurs d'orientation (d'ordre 2 et 4) en fonction du temps. Ainsi, de nombreux auteurs ont bien développé les calculs d'orientation et en particulier dans le cas de l'injection [Vincent et al., 1988 ; Vincent et Agassant, 1989 ; Han et Im, 2002].. La Figure 4 représente l'orientation des fibres de verre au cœur du châssis injecté, qui doit être comparée à la distribution des fibres en surface (Figure 1) : elle met en évidence la différence de répartition des fibres dans les deux épaisseurs. On constate donc qu'au final, une double anisotropie est obtenue : d'une part dans la pièce, du fait de l'écoulement ; d'autre part dans l'épaisseur de celle-ci.

### **Objectif et contexte de la thèse**

Sachant que les coefficients de dilatation sont liés comme les modules d'élasticité à l'orientation des fibres, les propriétés dimensionnelles de la pièce vont dépendre de la géométrie et des conditions de procédé, qui incluent le système d'alimentation et son positionnement. Etant donné que les moules pour injection demandent un investissement financier conséquent (de l'ordre de 1M€ pour un moule de bouclier automobile), les industriels souhaitent parvenir à prédire correctement la géométrie finale de la pièce (Figure 5) et préfèrent aujourd'hui le « copeau numérique » aux usinages coûteux sur les moules prototypes. C'est un enjeu technique et économique de premier ordre, mais aussi un défi scientifique. Pour y parvenir, un calcul rhéologique et une modélisation de la solidification doivent être menés par éléments finis, mais aussi un calcul thermo-mécanique dans le polymère solidifié qui requiert le comportement thermo-dépendant du matériau pendant le refroidissement.



**Figure 4 :** répartition des fibres de verre au coeur d'un châssis injecté en polyarylamide chargé à 50% de fibre (Calcul effectué par Solvay)



**Figure 5 :** répartition des déformées dans un châssis en polyarylamide injecté et chargé de 50% en poids de fibres de verre



Le comportement du matériau programmé dans les codes de simulation est généralement élastique et la Figure 5 montre un exemple de calcul des déformées obtenues dans un châssis injecté. Cependant, il faut préciser que ce calcul ne donne généralement que des résultats qualitatifs, en partie car les propriétés du matériau utilisées par les logiciels ne sont pas thermo-dépendantes (cas de Moldflow<sup>®</sup>) : en fait, les modules élastiques sont considérés en fonction de l'orientation des renforts, mais indépendamment de la température ; concernant les coefficients de dilatation, seules 2 valeurs sont considérées, l'une dans la direction de l'écoulement, l'autre dans la direction transverse. Il est clair que cette démarche est très simplificatrice et entraîne logiquement des analyses thermo-mécaniques faussées.

L'objectif de la thèse est alors précisément de parvenir à prédire les propriétés élastiques et les coefficients de dilatation de composites injectés et chargés de fibres courtes de verre. L'originalité de cette étude va résider dans le fait de considérer le problème dans son intégralité, en estimant l'ensemble des propriétés élastiques (modules et coefficients de dilatation) en fonction de l'orientation des fibres, mais aussi en fonction de la température (sur une gamme variant de l'ambiante à 200°C). Pour prédire les propriétés thermo-élastiques, nous aurons recours aux techniques d'homogénéisation, sans perdre de vue que les taux de renforts tendent à être de plus en plus élevés (40% à 50% en poids).

En réalité, le comportement du composite est visco-élastique, puisqu'il y a une relaxation d'une partie des contraintes pendant le refroidissement du matériau à haute température [Luyé, 1999]. L'homogénéisation en visco-élasticité commence à être développée, mais le problème est très complexe et les résultats pas encore très probants, comme l'ont montré les travaux de Levesque [2004] ou de Bédoui [2005] dans notre laboratoire. Dans le cas de la simulation de l'injection de composites, il ne semble d'ailleurs pas évident que le comportement visco-élastique doive aujourd'hui être abordé à l'échelle de la microstructure, mais plutôt à l'échelle macroscopique en deux temps, après une homogénéisation en élasticité. Nous nous placerons donc dans un cadre élastique.

Cette étude s'est effectuée dans le cadre d'un projet de recherche multipartenaires appelé FISH (Fiber-filled polymers: injection and SHrinkage) comprenant trois laboratoires et trois industriels, et dont le but est d'améliorer les prédictions dimensionnelles des pièces injectées. Trois thèses sont actuellement en cours dans le projet FISH qui réunit :

- le LMPB de l'Université Claude Bernard de Lyon avec R. Fulchiron encadrant une thèse sur l'influence des fibres sur la cinétique de cristallisation du polyarylamide induite par le cisaillement,
- le laboratoire de thermocinétique de l'école Polytechnique de Nantes avec D. Delaunay encadrant une thèse sur la modélisation des transferts thermiques sous hautes vitesses de refroidissement,

- le LIM de l'ENSAM de Paris avec G. Régnier encadrant le présent travail,
- les industriels LEGRAND, MOLDFLOW (USA) et SOLVAY (Belgique).

Le projet FISH fait suite à deux projets du même type, SWIM (Shrinkage and Warpage in Injection Molding) et SCOOP (Shrinkage Crystallinity Of Oriented Polymers), regroupant les mêmes partenaires, mais l'injection des matériaux composites est abordée pour la première fois dans FISH.

## **Structure du document de thèse**

### Partie 1

La 1<sup>ère</sup> partie de ce manuscrit traite de la détermination de l'orientation des fibres dans une pièce injectée. Elle présente, dans un premier temps, les outils mathématiques couramment utilisés pour caractériser l'état d'orientation et fait l'état de l'art des différentes méthodes expérimentales de mesures. Parmi celles-ci, nous décidons de nous orienter vers une technique utilisant le microscope électronique à balayage (MEB). Après avoir détaillé le protocole expérimental de cette technique, nous l'appliquons au cas de nos composites, qui sont des polyarylamides renforcés de fibres de verre courtes, injectés sous forme de plaque carrée de 1 mm et 3 mm d'épaisseur.

Dans le cas des matériaux injectés, les analyses effectuées ont mis en évidence une distribution particulière des fibres qui est induite par le procédé, ce qui nous a permis de développer une nouvelle technique, qui utilise toujours le MEB, mais qui présente l'avantage d'être beaucoup plus rapide que la méthode précédente. Cette dernière est également appliquée sur nos composites pour mesurer la distribution d'orientation.

Enfin, un dernier paragraphe traite de la prédiction de l'orientation des fibres. Les logiciels de simulation ont intégré les calculs d'orientation et les résultats d'orientation obtenus par le code de calcul Moldflow® sont comparés aux mesures expérimentales.

### Partie 2

L'aspect microstructural du composite étant bien défini, la Partie 2 s'intéresse à l'évaluation des propriétés thermo-mécaniques en fonction de l'orientation des fibres et de la température.

Le 1<sup>er</sup> chapitre rappelle certains résultats de base de l'homogénéisation et notamment le passage « micro-macro ». Ensuite une synthèse bibliographique des techniques d'homogénéisation les plus classiques en thermo-élasticité est présentée. Enfin, les modèles que nous avons développés dans notre étude sont détaillés : ils sont basés sur le modèle de Mori-Tanaka et pour tenir compte de l'état d'orientation des fibres, on verra que trois approches différentes sont possibles en élasticité. En ce qui

concerne les coefficients de dilatation thermique, une relation simple est déduite de l'équation de Levin dans le cas des composites biphasiques et permet d'évaluer les coefficients de dilatation directement à partir des propriétés élastiques du composite.

Le 2<sup>ème</sup> chapitre traite de la caractérisation thermo-mécanique des constituants du composite et du matériau injecté. Un certain nombre d'essais sont présentés et appliqués sur des éprouvettes de matrice injectée, afin de déterminer son module d'Young, son coefficient de Poisson et son coefficient de dilatation en fonction de la température ; ces mesures serviront de données d'entrée dans les modèles micro-mécaniques et c'est via la caractérisation de la matrice en fonction de la température que ce paramètre sera pris en compte dans les prédictions. Le même type d'essais est réalisé sur les composites injectés en plaques de 1 mm et 3 mm ; ces mesures serviront de références, puisqu'elles seront comparées aux prédictions obtenues par la modélisation.

La confrontation modèle / expérience est réalisée dans un 3<sup>ème</sup> chapitre : elle permet d'évaluer les différents modèles en les comparant aux mesures expérimentales.

Le premier modèle développé, qui prend en compte la distribution réelle d'orientation des fibres, présente l'inconvénient de ne pas être applicable à tous les systèmes composites.

Une autre approche est considérée, qui consiste en une procédure en deux étapes : dans la 1<sup>ère</sup> étape, les propriétés élastiques d'un composite fictif où tous les renforts sont alignés sont estimées ; dans une 2<sup>nde</sup> étape, ces propriétés sont moyennées en incorporant les tenseurs d'orientation. Selon que les tenseurs de rigidité ou de souplesse sont moyennés, deux modèles différents sont obtenus.

On notera que la procédure en deux étapes nécessite une description de l'orientation sous forme de tenseurs d'ordre 2 et 4. Les tenseurs d'ordre 2 sont facilement obtenus par les logiciels de simulation, alors que les tenseurs d'ordre 4 doivent être estimés à partir des tenseurs d'ordre 2, via des hypothèses appelées équations de fermeture. Nous testons dans cette étude les approximations de fermeture les plus classiques ; les résultats obtenus n'étant guère satisfaisants, nous proposons une solution basée sur la description, par une fonction, de la forme de la distribution d'orientation.

## PARTIE 1

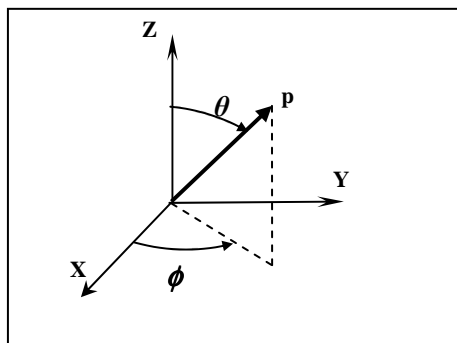
# DETERMINATION DE L'ORIENTATION DES FIBRES DANS UNE PIECE INJECTEE

## 1. LES METHODES DE MESURES, ETAT DE L'ART

### 1.1 Représentation de l'état d'orientation

L'orientation d'une fibre dans un repère (X,Y,Z) peut être définie par les angles d'Euler  $\theta$  et  $\phi$  (Figure 1.1), ou par les coordonnées cartésiennes d'un vecteur unitaire  $\vec{p}$  parallèle à la fibre et caractérisé par :

$$\vec{p} = \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \phi \\ \sin \theta \sin \phi \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad (1.1)$$



**Figure 1.1** : définition de l'orientation d'une fibre

Dans la littérature, ces angles sont définis de façon conventionnelle [Advani et Tucker, 1987 ; O'Connell et Duckett, 1991, Eberhardt et Clarke, 2001] tels que :

- l'angle  $\theta$ , appelé angle d'inclinaison, est l'angle formé de l'axe Z à la direction de la fibre ;
- l'angle  $\phi$  ou angle azimutal est lui défini dans le plan (X,Y), par rapport à l'axe X .

Sachant qu'une fibre n'a pas de sens, les valeurs de  $\theta$  varient entre  $0^\circ$  et  $180^\circ$ , celles de  $\phi$  entre  $-90^\circ$  et  $90^\circ$ . Pour caractériser l'orientation de fibres dans des pièces injectées, l'axe Z est généralement défini normal au plan d'écoulement de la matière.

Quand on étudie l'orientation d'une population de fibres, il est impossible de saisir les tendances globales de la distribution d'orientation si on travaille avec les données d'orientation de chacune des fibres. Aussi plusieurs représentations mathématiques existent, comme les fonctions d'orientation, les fonctions de distribution d'orientation ou les tenseurs d'orientation, afin de décrire la distribution d'orientation de manière plus concise. Ces représentations mathématiques, qui seront décrites dans le paragraphe suivant, sont d'ailleurs beaucoup plus facilement intégrables dans les équations de mécanique, utilisées lors des modélisations par exemple.

### a) Fonctions d'orientation

La plus simple des fonctions d'orientation généralement utilisée pour caractériser l'orientation moléculaire dans le cas d'une distribution uniaxiale est la fonction d'Hermans [1946], définie par :

$$f = \frac{3\langle \cos^2 \theta \rangle - 1}{2} \quad (1.2)$$

où  $\theta$  est l'angle que font les chaînes de polymère avec une direction de référence et les crochets  $\langle \rangle$  représentant une moyenne sur tous les angles. Il est utile de noter que :

- $f = 1$  si tous les éléments sont orientés dans la direction de référence,
- $f = -0.5$  si tous les éléments sont perpendiculaires à la direction de référence,
- $f = 0$  pour une distribution aléatoire dans l'espace où  $\langle \cos^2 \theta \rangle = 1/3$ .

Dans un repère donné (X,Y,Z), on peut généraliser la fonction d'Hermans en considérant l'orientation par rapport à chaque axe. Ainsi si  $I$  représente les axes X, Y ou Z et si  $\theta_I$  définit l'angle d'orientation par rapport à l'axe  $I$ , alors on a :

$$f_I = \frac{3\langle \cos^2 \theta_I \rangle - 1}{2} \quad (1.3)$$

Une relation simple existe entre les 3 fonctions d'orientation :

$$f_X + f_Y + f_Z = 0 \quad (1.4)$$

Cette représentation est particulièrement utilisée pour décrire l'orientation des axes cristallographiques dans les polymères semi-cristallins [Mendoza, 2005], mais elle a aussi été utilisée pour décrire l'orientation de fibres de cellulose [McGee et McCullough, 1984].

Quand on a une orientation préférentielle dans un plan, les facteurs de Krenchel  $f_{\theta_1}$  et  $f_{\theta_2}$  permettent de définir l'orientation par rapport à une direction donnée [Krenchel, 1964]. Ils sont définis par :

$$\begin{cases} f_{\theta_1} = \frac{\sum_{k=1}^N n_k \cos^4 \theta_k}{\sum_{k=1}^N n_k} \\ f_{\theta_2} = \frac{\sum_{k=1}^N n_k \sin^4 \theta_k}{\sum_{k=1}^N n_k} \end{cases} \quad (1.5)$$

où  $N$  représente l'ensemble des éléments dans le volume considéré et  $n_k$  correspond au nombre d'éléments formant un angle  $\theta_k$  avec l'axe de référence. On remarquera que si toutes les fibres sont :

- parallèles à l'axe de référence,  $f_{\theta_1} = 1$  et  $f_{\theta_2} = 0$ ,
- perpendiculaires à l'axe de référence,  $f_{\theta_1} = 0$  et  $f_{\theta_2} = 1$ ,
- disposées de manière aléatoire dans le volume considéré,  $f_{\theta_1} = f_{\theta_2} = 3/8$ .

Vincent [1984] a introduit une fonction d'orientation  $f_V$ , dérivée de la fonction d'Hermans et adaptée à l'observation de la projection de fibres sur un plan (observation par microradiographie, par exemple). Elle se définit par :

$$f_V = \frac{2\langle \cos^2 \theta \rangle - 1}{2} \quad (1.6)$$

Ses valeurs varient entre +0.5 pour des fibres parallèles à la direction de référence et -0.5 pour des fibres perpendiculaires ; on notera que dans le cas d'une orientation parfaitement aléatoire où  $\langle \cos^2 \theta \rangle = 1/2$ ,  $f$  est égale à 0.

On trouve dans la littérature des fonctions d'orientation supplémentaires, comme celle de Vaxman et al. [1988], définie par :

$$f = \langle \sin^4 \theta \sin^2(2\phi) \rangle \quad (1.7)$$

En fait, une généralisation de ces différentes fonctions d'orientation peut être faite en les exprimant sous la forme d'une série de fonctions harmoniques sphériques ; cette généralisation définit ce qu'on appelle la fonction de distribution d'orientation, qui va être présentée dans le paragraphe qui suit.

## b) Fonctions de distribution d'orientation

Une description générale de l'orientation des fibres peut être apportée par l'utilisation de la fonction de distribution d'orientation  $\psi(\theta, \phi)$ , proposée à l'origine par Tucker III [Tucker et Folgar, 1983 ; Advani et Tucker, 1987 ; Jain et Wetherhold, 1992] et qui décrit la probabilité de trouver des fibres orientées à  $(\theta, \phi)$  dans le matériau. En fait,  $\psi$  est définie de telle sorte que la probabilité  $P$  de trouver une fibre entre les angles  $\theta_1$  et  $(\theta_1 + d\theta)$ ,  $\phi_1$  et  $(\phi_1 + d\phi)$  soit égale à :

$$P(\theta_1 \leq \theta \leq \theta_1 + d\theta, \phi_1 \leq \phi \leq \phi_1 + d\phi) = \psi(\theta_1, \phi_1) \sin \theta_1 d\theta d\phi \quad (1.8)$$

où  $\sin \theta_1 d\theta d\phi$  est l'angle solide généralisé.

Comme les deux extrémités d'une fibre sont équivalentes, on a la relation :

$$\psi(\vec{p}) = \psi(-\vec{p}) \quad (1.9)$$

ce qui signifie que la fonction  $\psi$  est paire. Par ailleurs, cette fonction est soumise à une condition de normalisation telle que :

$$\int_{-\pi/2}^{\pi/2} \int_0^{\pi} \psi(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi = \int_{\Omega} \psi(\vec{p}) d\vec{p} = 1 \quad (1.10)$$

où  $\Omega$  est une sphère unitaire.

D'une manière générale, cette fonction de distribution d'orientation peut être exprimée sous la forme d'une série de fonctions harmoniques sphériques [Cole et Ajji, 2000] :

$$\psi(\theta, \phi, \gamma) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{+l} \sum_{n=-l}^{+l} P_{lmn} Z_{lmn}(\cos \theta) e^{-im\phi} e^{-in\gamma} \quad (1.11)$$

où les coefficients  $Z_{lmn}$  sont une généralisation des polynômes de Legendre et les  $P_{lmn}$  sont les coefficients à déterminer, appelés moments de la fonction de distribution d'orientation. Dans l'équation précédente,  $\gamma$  représente l'angle de rotation de l'unité autour d'elle-même : quand on étudie l'orientation de fibres qui possèdent une symétrie de révolution, cet angle  $\gamma$  peut être ignoré, ce qui n'est pas le cas d'une chaîne moléculaire.

La détermination de tous les  $P_{lmn}$  est complexe. Si l'échantillon et l'unité (la fibre dans notre cas) ont au moins une symétrie orthorhombique, comme c'est le cas dans de nombreux matériaux, alors les  $P_{lmn}$  ne seront non nuls que pour des valeurs paires de  $m$  et  $n$ . Lorsque  $l = 2$ , on définit les moments d'ordre 2, qui suffisent bien souvent à approcher la distribution d'orientation. Quatre moments du second ordre peuvent être définis dans le cas général ; ils se réduisent à deux dans le cas des fibres de symétrie cylindrique :

$$\begin{cases} P_{200} = \frac{1}{2} \langle 3 \cos^2 \theta - 1 \rangle \\ P_{220} = \frac{1}{4} \langle (1 - \cos^2 \theta) \cos 2\phi \rangle \end{cases} \quad (1.12)$$

On reconnaît le premier moment  $P_{200}$ , qui est en fait la fonction d'Hermans (Eq.1.2) et les fonctions d'orientation  $f_i$  de la fibre par rapport aux autres axes valent :

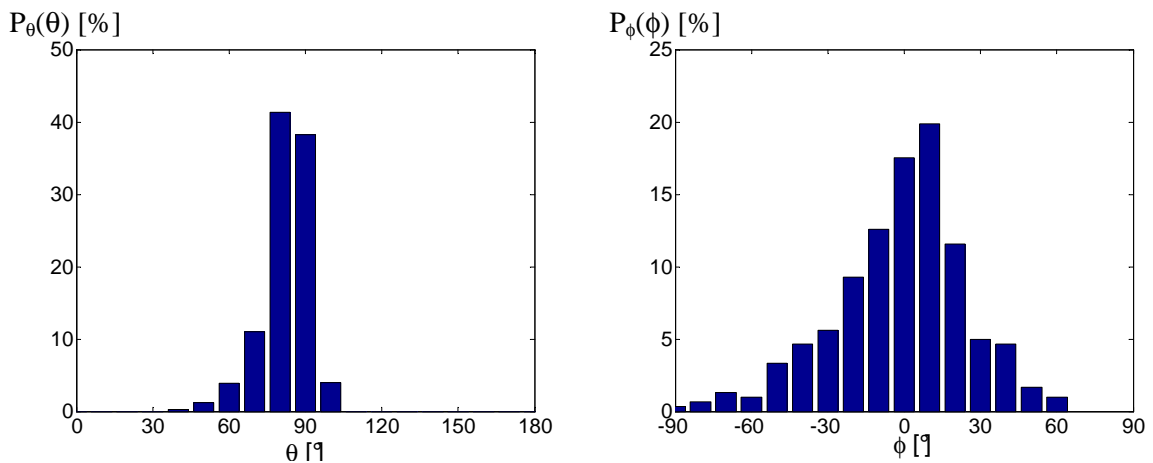
$$\begin{cases} f_z = P_{200} \\ f_x = -1/2 P_{200} + 3 P_{220} \\ f_y = -1/2 P_{200} - 3 P_{220} \end{cases} \quad (1.13)$$

### Fonctions de distributions particulières

En intégrant une seule fois l'équation 1.10 par rapport à l'un des deux angles  $\theta$  et  $\phi$ , les distributions d'orientation  $\psi_\phi(\phi)$  dans le plan (X,Y) et  $\psi_\theta(\theta)$  par rapport à l'axe Z (et quel que soit  $\phi$ ) peuvent être déterminées. Les fonctions de distribution des probabilités d'orientation  $P_\phi(\phi)$  et  $P_\theta(\theta)$  sont alors facilement calculées. Par exemple, la probabilité  $P_\phi(\phi)$  de trouver une fibre orientée dans un intervalle  $[\phi - \phi_1; \phi + \phi_1]$  vaut alors :

$$P_\phi(\phi) = \int_{\phi - \phi_1}^{\phi + \phi_1} \psi_\phi(\phi') d\phi' \quad (1.14)$$

Ces représentations, qui permettent d'appréhender plus facilement la distribution d'orientation d'un ensemble de fibres, comme le montre l'exemple de la figure 1.2, sont souvent discrètes et non continues, lorsqu'elles sont déterminées à partir de mesures expérimentales.



**Figure 1.2** : représentation discrète des fonctions de distribution de probabilité d'orientation  $P_\theta(\theta)$  et  $P_\phi(\phi)$  dans le cas d'un polyarylamide injecté et chargé de 30% en poids de fibres de verre



Il peut s'avérer utile de disposer d'une fonction continue capable de décrire les variations expérimentales de la fonction de distribution d'orientation. Kacir, par exemple, a proposé une fonction exponentielle à un paramètre, dans le cas d'une distribution dans un plan et symétrique par rapport à un axe [Kacir et al., 1975]. Cette fonction est la suivante :

$$f_{Kacir}(\phi) = \lambda e^{-\lambda\phi} \quad (1.15)$$

où l'angle  $\phi$  varie entre  $0^\circ$  et  $90^\circ$ . Le paramètre  $\lambda$  indique le degré d'alignement des fibres :  $\lambda$  tend vers 0 pour une distribution aléatoire et  $\lambda$  tend vers  $+\infty$  pour une orientation parfaitement unidirectionnelle. Chen et Cheng [1996] et Chen et Wang [1996] ont utilisé cette fonction pour estimer les modules élastiques et la conductivité thermique, respectivement, de matériaux composites contenant des fibres orientées dans un plan. La fonction de distribution associée à cette fonction pour un angle  $\phi$  variant entre  $-90^\circ$  et  $90^\circ$  s'écrit alors :

$$\psi_{Kacir}(\phi) = \frac{f_{Kacir}(|\phi|)}{\int f_{Kacir}(|\phi|) d\phi} = \frac{\lambda e^{-\lambda|\phi|}}{2 \int_{\phi=0}^{\pi/2} \lambda e^{-\lambda\phi} d\phi} = \frac{\lambda e^{-\lambda|\phi|}}{2 \left(1 - e^{-\lambda \frac{\pi}{2}}\right)} \quad (1.16)$$

### c) Tenseurs d'orientation

Bien que les fonctions de distribution d'orientation procurent une description complète de l'orientation, il existe un autre outil qui est largement utilisé pour caractériser l'orientation : il s'agit des tenseurs d'orientation, introduits à l'origine par Hand [1962]. Ces derniers présentent l'avantage d'avoir la même forme tensorielle que les représentations du comportement élastique des composites, c'est pourquoi ils sont souvent préférés dans les modèles micromécaniques, quand l'orientation des fibres est prise en compte. Ces tenseurs sont définis comme les moments de la fonction  $\psi$  [Advani et Tucker, 1987]. Par exemple, les composantes des tenseurs d'ordre 2 [ $a_2$ ] et d'ordre 4 [ $a_4$ ] sont données, respectivement, par :

$$a_{ij} = \int_{\Omega} p_i p_j \psi(\vec{p}) d\vec{p} = \langle p_i p_j \rangle \quad (1.17)$$

$$a_{ijkl} = \int_{\Omega} p_i p_j p_k p_l \psi(\vec{p}) d\vec{p} = \langle p_i p_j p_k p_l \rangle \quad (1.18)$$

où  $\Omega$  est une sphère unitaire,  $\vec{p}$  le vecteur unitaire parallèle à la fibre,  $p_i p_j$  sont les composantes du tenseur d'ordre 2 obtenues par le produit  $\vec{p} \cdot^t \vec{p}$  et les crochets  $\langle \rangle$  représentant la moyenne sur toutes les orientations d'une population finie de fibres.

La fonction  $\psi$  étant paire, les intégrales de rang impair (et donc les tenseurs d'ordre impair) sont nulles. Bien que les tenseurs d'ordre supérieur se calculent sur le même principe, on se limite ici aux rangs 2 et 4, car ce sont les seuls qui nous seront utiles dans la suite. Notons qu'un tenseur d'orientation d'ordre 2 n'apporte qu'une description assez pauvre de la distribution d'orientation ; par exemple, des distributions planaires isotropes ou orthotropes auront le même tenseur diagonal avec deux composantes égales à 0.5.

Ces tenseurs sont par définition symétriques (pour un tenseur d'ordre 2,  $a_{ij} = a_{ji}$  et pour un tenseur d'ordre 4, toute permutation des 4 indices  $i, j, k, l$  maintient  $a_{ijkl}$  constant) et normalisés. En conséquence, leur trace est égale à 1. De plus, les coordonnées du vecteur unitaire  $\vec{p}$  vérifient :

$$p_1^2 + p_2^2 + p_3^2 = 1 \quad (1.19)$$

alors il en résulte pour le tenseur d'ordre 4 que :

$$\begin{cases} a_{1111} + a_{1122} + a_{1133} + a_{2211} + a_{2222} + a_{2233} + a_{3311} + a_{3322} + a_{3333} = 1 \\ a_{1111} + a_{1212} + a_{1313} + a_{2121} + a_{2222} + a_{2323} + a_{3131} + a_{3232} + a_{3333} = 1 \end{cases} \quad (1.20)$$

L'ensemble des symétries et propriétés (Eq.1.20) des tenseurs implique qu'un tenseur d'ordre 2 n'a que cinq composantes indépendantes (parmi les 9 définissant la matrice) et qu'un tenseur d'ordre 4 n'en a que 13 (parmi les 81), soit par exemple le jeu de composantes du tableau 1.6.

Enfin, il est intéressant de noter que les tenseurs d'ordre supérieur peuvent décrire complètement les tenseurs d'ordre inférieur, comme le montre cette relation directement obtenue à partir de l'équation 1.18 :

$$a_{ijkk} = a_{ij} \quad \text{ou encore} \quad a_{ijklmm} = a_{ijkl} \quad (1.21)$$

où la répétition d'un indice indique une sommation, soit par exemple pour la première équation :  $a_{ij11} + a_{ij22} + a_{ij33} = a_{ij}$ .

Lorsqu'une seule fibre  $k$  d'orientation  $(\theta^k, \phi^k)$  est considérée, il résulte de l'équation 1.17 que les composantes du tenseur d'ordre 2  $[a_{ij}^k]$  sont simplement :

$$[a_{ij}^k] = \begin{bmatrix} \sin^2 \theta^k \cos^2 \phi^k & \sin^2 \theta^k \cos \phi^k \sin \phi^k & \sin \theta^k \cos \theta^k \cos \phi^k \\ \sin^2 \theta^k \cos \phi^k \sin \phi^k & \sin^2 \theta^k \sin^2 \phi^k & \sin \theta^k \cos \theta^k \sin \phi^k \\ \sin \theta^k \cos \theta^k \cos \phi^k & \sin \theta^k \cos \theta^k \sin \phi^k & \cos^2 \theta^k \end{bmatrix} \quad (1.22)$$

Dans le cas où  $n$  fibres sont considérées, le tenseur moyen d'orientation peut être obtenu en moyennant les contributions de chacune des fibres. Si l'orientation de la  $k^{\text{ième}}$  fibre est représentée par  $\vec{p}^k$ , alors les composantes du tenseur d'ordre 2  $[a_2]$  de l'équation 1.17 peuvent être calculées par l'approche discrète qui suit :

$$a_{ij} = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n a_{ij}^k = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n p_i^k p_j^k \quad (1.23)$$

Il est évident que de même, le tenseur d'ordre 4 d'une seule fibre est immédiatement obtenu, alors que celui d'une population de  $n$  fibres nécessite des opérations de moyenne comme dans l'équation 1.23 :

$$a_{ijkl} = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n a_{ijkl}^k = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n p_i^k p_j^k p_k^k p_l^k \quad (1.24)$$

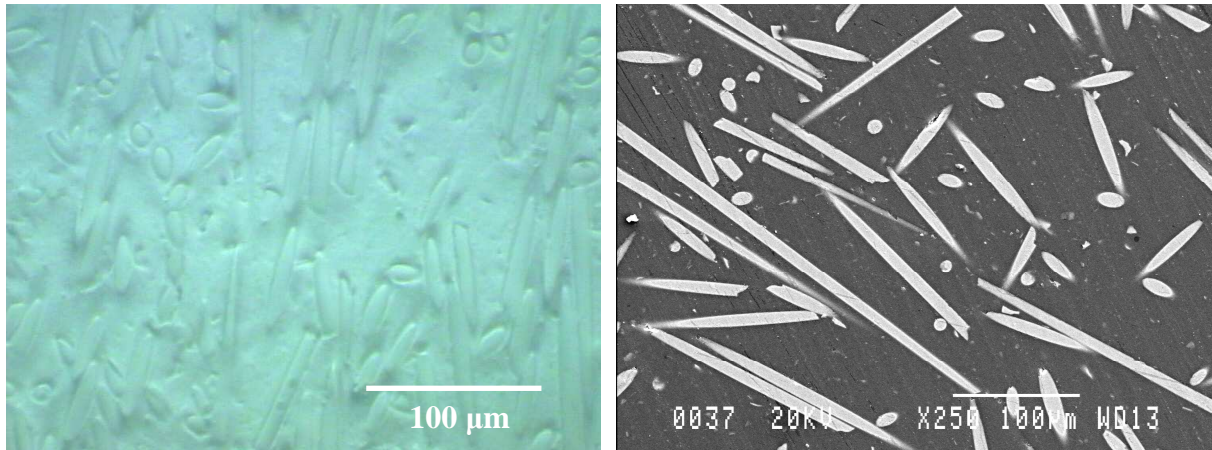
## 1.2 Les techniques de mesure

### 1.2.1 Microscopie en réflexion

#### a) Principe

La microscopie optique en réflexion [Fischer et Eyerer, 1988 ; Vaxman et al., 1988 ; Bay et Tucker, 1992 ; Hine et al., 1993 ; Zhu et al., 1997] et la microscopie électronique à balayage [Roulin-Moloney, 1989 ; Leterrier, 1991 ; Avèrous, 1995 ; Saint-Martin, 2003] font l'objet du plus grand nombre de travaux sur l'observation de la distribution de renforts dans les matériaux composites. Le principe consiste à analyser les empreintes elliptiques de chaque fibre sur des sections polies du matériau et de traduire les données obtenues en terme d'orientation.

La microscopie électronique à balayage permet d'atteindre des objets plus petits : en effet, le domaine de grossissement d'un microscope optique est typiquement de 5 à 1500, alors que celui du microscope électronique à balayage (MEB) est de 20 à  $10^5$  [Sawyer et Grubb, 1987]. Cependant, ce n'est pas sur le critère grossissement que le choix d'une méthode ou de l'autre s'effectue, car les fibres ayant en général un diamètre d'environ 10  $\mu\text{m}$ , un grossissement de 250 fois est approprié pour distinguer assez finement les ellipses et pour obtenir un nombre significatif de fibres sur l'image de façon à avoir une statistique suffisante. Le contraste entre les phases est en revanche un paramètre décisif. En microscopie optique, il est fonction des matériaux utilisés et il est souvent insuffisant pour des traitements ultérieurs par des logiciels d'analyse d'images : c'est le cas par exemple d'une matrice en polyarylamide naturel renforcée de fibres de verre (Figure 1.3).



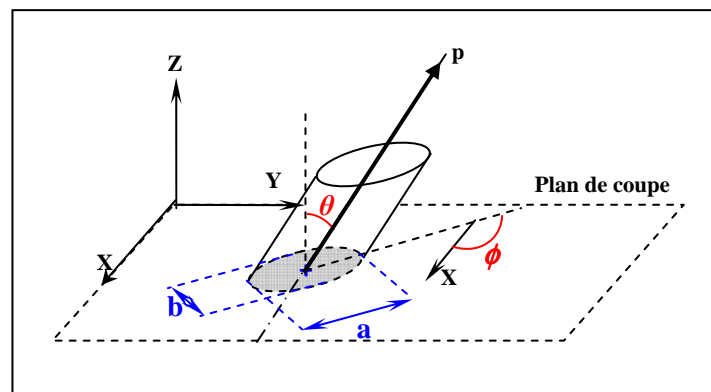
a) microscope optique

b) microscope électronique à balayage

**Figure 1.3 :** comparaison du contraste dans un composite polyarylamide /fibres de verre lors de l'observation par microscopie optique (a) et par MEB (b)

De ce fait, des traitements particuliers sont nécessaires afin d'améliorer le contraste entre les phases [Mlekusch et al., 1999] et ils ne sont pas adaptés à tous les cas. Avec un MEB en revanche, seule une métallisation est indispensable, et cette étape peut même être évitée si on utilise un MEB environnemental ou à faible vide.

Dans le cas de composites chargés de fibres courtes, si on considère que ces dernières sont de section circulaire, alors l'intersection d'un plan de coupe (X,Y,Z) avec une fibre forme une ellipse, dont les dimensions sont  $a$  et  $b$  (Figure 1.4).

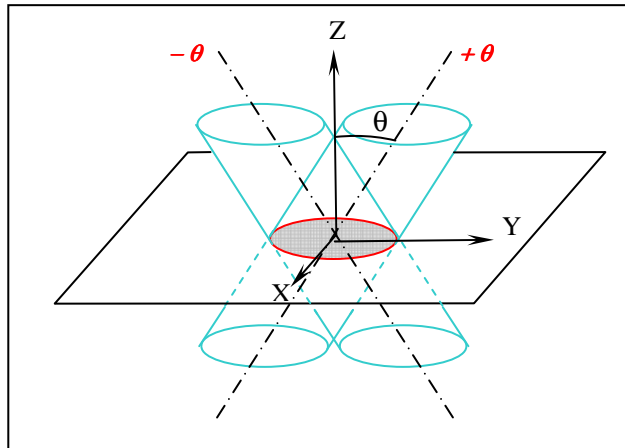


**Figure 1.4 :** intersection d'une fibre avec un plan de coupe

L'usage d'un logiciel d'analyse d'images, tel que *Micro Vision System*® ou *Aphelion*®, permet d'identifier chaque fibre comme une ellipse et détermine automatiquement les caractéristiques de l'ellipse, c'est-à-dire les coordonnées  $(x_C, y_C)$  de son centre, ses dimensions  $a$  et  $b$ , ainsi que son angle dans le plan de coupe, par rapport à une direction de référence (appelé  $\phi$  dans le paragraphe 1.1). L'angle d'inclinaison  $\theta$  est déduit par la relation :

$$|\theta| = \arccos \frac{b}{a} \quad (1.25)$$

Mais une ambiguïté persiste quant à l'orientation de la fibre, qui peut avoir deux positions possibles et statistiquement égales : en effet, deux fibres orientées à  $+\theta$  et  $-\theta$  par rapport à l'axe Z forment la même ellipse sur le plan de coupe (Figure 1.5), c'est pourquoi le signe de  $\theta$  reste indéterminé.



**Figure 1.5 :** indétermination du signe de  $\theta$

Les conséquences sont importantes, puisque dans un cas général, si par exemple la notion de tenseur d'orientation est choisie pour décrire l'état d'orientation, il en résulte que deux des cinq composantes du tenseur d'ordre 2, à savoir  $a_{13}$  et  $a_{23}$ , ne peuvent pas être calculées (dans le cas particulier d'une distribution d'orientation des fibres strictement dans un plan, le problème ne se pose pas et toutes les composantes du tenseur peuvent être obtenues).

### **b) Détermination de la distribution spatiale d'orientation**

Pour soulever l'indétermination liée à l'observation simple d'une coupe 2D et obtenir une description tridimensionnelle de l'état d'orientation, certains auteurs proposent de combiner les données obtenues à partir de trois coupes orthogonales [Bay et Tucker, 1992] ; d'autres montrent que deux coupes orthogonales sont suffisantes [Zhu et al., 1997 ; Mlekusch, 1999] ; enfin d'autres encore suggèrent de procéder à deux coupes parallèles, successives dans l'épaisseur du matériau [Zak et al., 2001]. En pratique, la réalisation de ces différentes méthodes est longue et difficile, car l'échantillon doit être retiré du dispositif et soigneusement poli avant l'analyse de chaque plan de coupe.

Il apparaît nécessaire de faire appel à des méthodes moins contraignantes, capables néanmoins de fournir les données d'orientation des fibres sans ambiguïté à partir de l'observation d'une seule coupe.

Une technique d'observation « optique » d'un matériau à deux profondeurs différentes a été proposée par Lian et al. [1994]. Elle consiste à observer par microscopie optique des matériaux transparents renforcés de fibres opaques : les exigences concernant la couleur des phases et la limite de profondeur observable restreignent fortement l'utilisation de cette technique.

La microscopie confocale à balayage laser [Clarke et al., 1993, 1995 ; Eberhardt et Clarke, 2001] est une autre technique permettant d'observer « optiquement » un matériau à deux épaisseurs (méthode non destructive), grâce à la maîtrise de la profondeur du plan focal (une dizaine de microns). Cette méthode, bien que limitée par un équipement spécial et un coût assez élevé, présente l'avantage de pouvoir procéder à des mesures tridimensionnelles à partir d'une seule coupe.

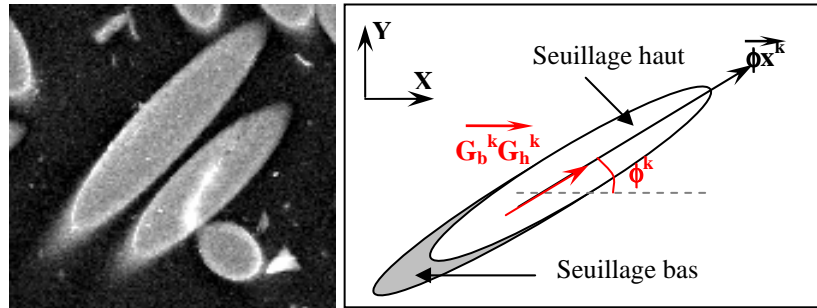
Leterrier [1991 ; Leterrier et al., 1992] a mis au point une technique qui utilise la microscopie électronique à balayage et qui est fondée sur l'analyse de l'ellipticité de la section de chaque fibre pour calculer l'orientation spatiale des fibres. Il a d'ailleurs créé un logiciel, appelé *VidéoFibres*®, pour analyser la distribution d'orientation tridimensionnelle des fibres dans les composites. La mise en œuvre de sa technique est quelque peu complexe : ne disposant pas de logiciel d'analyse d'images, un premier algorithme détermine le contour de chacun des objets et après l'application de plusieurs types de filtres, un 2<sup>ème</sup> calcule l'ellipticité du contour, d'où sont déduits les données d'orientation de chaque objet. Mais le point le plus important à souligner est le fait que dans sa technique, l'angle d'inclinaison (calculé par rapport au plan de coupe), est défini entre 0° et 90° : on voit donc qu'il fait abstraction de l'ambiguïté d'orientation d'une fibre (Figure 1.5) et qu'une donnée est manquante pour décrire rigoureusement l'orientation tridimensionnelle des fibres.

La méthode qui consiste à utiliser un MEB constitue néanmoins un bon point de départ. La microscopie électronique à balayage présente une profondeur de champ plus importante que la microscopie optique et ajustable selon l'énergie utilisée. Aussi en observant des échantillons soigneusement polis via une source d'électrons rétrodiffusés (haute énergie), une image presque binaire est obtenue, où les fibres apparaissent en blanc et la matrice en noir (Figure 1.3-b). Si la tension appliquée est suffisamment forte, de l'ordre de 20-25kV, une ombre grise apparaît à l'une des extrémités de l'ellipse (Figure 1.6), correspondant à la faible quantité de matrice recouvrant la fibre qui pénètre le matériau. Il est ainsi possible de connaître le sens de fuite de la fibre.

Lorsqu'une population de fibres est prise en compte, la procédure doit être automatisée et une méthode qui consiste à analyser la même micrographie avec deux niveaux de seuillage a été mise au point :

- un seuillage haut qui exclut l'ombre de chaque ellipse et aboutit à une première image binaire qui sert de référence,
- et un seuillage bas qui inclut l'ombre et crée une deuxième image binaire, avec des ellipses plus grandes et donc un décalage des centres.

Le principe de l'ombre et du double seuillage a été appliqué par Avèrous, puis Saint-Martin [Avèrous et al., 1995, 1997, 1998 ; Saint-Martin et al., 2002].



**Figure 1.6 :** représentation du vecteur déplacement du centre de gravité  $\vec{G}_b^k \vec{G}_h^k$  d'une ellipse

Les caractéristiques des ellipses des deux images binaires sont déterminées par l'utilisation du logiciel d'analyse d'images. C'est ainsi que les paramètres  $a^k$ ,  $b^k$ ,  $\phi^k$ ,  $|\theta^k|$  et les coordonnées du centre de gravité  $G_h^k$  sont mesurés pour chaque ellipse sur l'image de référence (seuillage haut) ; sur la deuxième image, seules les coordonnées du centre de gravité  $G_b^k$  et l'angle  $\phi^k$  de chaque fibre sont nécessaires. L'indétermination est alors levée en évaluant le sens du vecteur  $\vec{G}_b^k \vec{G}_h^k$ , correspondant au déplacement du centre de gravité de l'ellipse (Figure 1.6). De cette manière, le problème d'ambiguïté d'orientation peut être résolu à partir de l'observation d'un seul plan de coupe.

### c) Facteur correctif

Il est important de prendre en compte le fait que la probabilité d'intersection d'une fibre avec un plan de coupe normal à l'axe Z (Figure 1.4) diminue quand l'angle d'inclinaison  $\theta$  augmente et tend vers  $90^\circ$  ; dans le cas où en plus, la fibre a une longueur finie L, cette probabilité diminue aussi quand la longueur de la fibre diminue. Cette remarque est importante quand on analyse des sections polies, car elle a pour conséquence de sous-estimer le nombre effectif de fibres ayant des valeurs de  $\theta$  proches de  $90^\circ$  et ayant une plus petite longueur [DeHoff et Rhines, 1968].

Pour corriger ce biais, il est indispensable d'introduire un facteur correctif permettant d'augmenter le poids des fibres les plus courtes et à forte inclinaison, fibres qui ont théoriquement moins de chances de rencontrer le plan de coupe. Diverses formes de ce facteur pondéral ont été proposées par différents auteurs [Möginger et Eyerer, 1991; Bay et Tucker, 1992; Zhu et al., 1997] : dans tous les cas, il est exprimé en fonction de la longueur moyenne L et du diamètre moyen D des fibres (ou en fonction de leur rapport de forme moyen L/D). Il existe une autre manière très simple d'évaluer ce facteur correctif, basée sur des considérations géométriques [Zhu et al., 1997 ; Eberhardt et Clarke, 2001]. En effet, la probabilité qu'une fibre k de longueur finie L et diamètre D, orientée à un angle  $\theta^k$  par rapport à l'axe Z, intercepte le plan de coupe normal à Z, est directement liée à :

$$Q^k(\theta^k) = L \cos \theta^k + D \sin |\theta^k| \quad (1.26)$$

et un facteur correctif inversement proportionnel à cette probabilité d'intersection en découle :

$$F^k = 1/Q^k \quad (1.27)$$

Cette correction doit être incorporée dans les données d'orientation, quel que soit le type de caractérisation utilisée.

### Cas des fonctions de distribution d'orientation

Dans le cas de fonctions discrètes de distribution d'orientation, la probabilité  $P_\theta(\theta)$  de trouver une fibre orientée à un angle  $\theta$  est obtenue en divisant le nombre de fibres  $N_\theta$  orientée à  $\theta$  par le nombre total de fibres  $N_T$  contenues dans le matériau.

Donc on a:

$$P_\theta(\theta) = \frac{N_\theta}{N_T} \quad (1.28)$$

avec  $N_T = \sum N_\theta$ . Mais en réalité, on ne compte expérimentalement que le nombre  $N_\theta'$  de fibres orientées à  $\theta$  dans le plan de coupe (et non le nombre total  $N_\theta$  contenu dans l'échantillon). On obtient une probabilité mesurée, définie par :

$$P_{\theta \text{ mes}}(\theta) = \frac{N_\theta'}{N_T'} \quad (1.29)$$

La probabilité que des fibres d'orientation  $\theta$  interceptent le plan de coupe peut être déterminée par :

$$Q(\theta) = \frac{N_\theta'}{N_\theta} \quad (1.30)$$

Par conséquent, la fonction de distribution de probabilité corrigée est obtenue à partir de la fonction mesurée, puisque les équations 1.28-1.29-1.30 peuvent être combinées de sorte que :

$$P_{\theta \text{ cor}}(\theta) = \frac{N_\theta}{N_T} = \frac{N_\theta' \frac{1}{Q(\theta)}}{\sum_k \left( N_\theta^k \frac{1}{Q(\theta^k)} \right)} \quad (1.31)$$



et par définition du facteur correctif (Eq.1.27), on obtient :

$$P_{\theta \text{ cor}}(\theta) = \frac{\psi_{\theta \text{ mes}}(\theta) F}{\sum_k (\psi_{\theta \text{ mes}}(\theta^k) F^k)} \quad (1.32)$$

On peut noter que l'angle  $\phi$  étant contenu dans le plan de coupe, la fonction de distribution de probabilité  $P_{\phi}(\phi)$  mesurée ne nécessite pas d'être corrigée.

### Cas des tenseurs d'orientation

De la même manière, on peut obtenir une estimation non biaisée du tenseur d'orientation d'ordre 2 en incorporant le facteur correctif  $F^k$  dans l'équation 1.23.

Il en résulte que les composantes  $a_{ij}$  de ce tenseur sont calculées en moyennant les composantes  $a_{ij}^k$  de chacune des  $n$  fibres de la façon suivante [Bay et Tucker, 1992] :

$$a_{ij} = \frac{\sum_{k=1}^n F^k a_{ij}^k}{\sum_{k=1}^n F^k} \quad (1.33)$$

Pour un tenseur d'ordre 4 et sur le même principe que l'équation 1.33, l'équation 1.24 devient :

$$a_{ijkl} = \frac{\sum_{k=1}^n F^k a_{ijkl}^k}{\sum_{k=1}^n F^k} \quad (1.34)$$

## 1.2.2 Les autres méthodologies d'analyse

Une variété de techniques expérimentales, destructives et non destructives, a été développée dans le but de mesurer la distribution d'orientation des fibres dans la matrice. Parmi elles, on trouve principalement des méthodes utilisant les différences d'absorption entre les phases.

La microscopie en transmission [Folkes et Potts, 1985 ; Kamal et al., 1986] atteint ses limites dès lors que la fraction volumique des fibres devient relativement importante et cela tant en microscopie optique qu'électronique à balayage ; elle est plutôt appropriée pour l'étude de charge isolée.

La microradiographie de contact [Darlington et McGinley, 1975 ; Heckmann et Ramsteiner, 1980 ; Vincent, 1984] est une mesure en transmission, basée sur les variations d'absorption d'un rayonnement X entre les différentes phases d'un milieu hétérogène. Cette méthode présente l'inconvénient de ne fournir qu'une information bidimensionnelle. Sur le même principe, Urabe et Yomoda [1991] ont utilisé les micro-ondes.

L'imagerie par tomographie X [Kriete, 1992; Hamilton et al., 2002 ; Pandita et Verpoest, 2003], initialement conçue dans les années 60 pour des applications médicales, a été adaptée aux matériaux, notamment aux composites tissés [Desplentere, 2005]. La méthode consiste en une série d'acquisitions bidimensionnelles (par rotation de l'échantillon), qui représentent l'atténuation de rayons X à travers le matériau ; l'utilisation d'un algorithme permet de combiner les informations bidimensionnelles pour reconstruire des images tridimensionnelles. Cette technique, très prometteuse, présente l'avantage de ne nécessiter aucune préparation particulière des échantillons (pas de polissage notamment), mais en revanche l'acquisition des différentes coupes 2D en mode automatique requiert beaucoup de temps (plusieurs heures, en fonction du nombre de coupes désirées) et même si le nombre d'équipements (industriels) disponibles augmente, le temps passé sur ces instruments reste onéreux.

La microscopie acoustique [Fagan et al., 1989 ; Lisy et al., 1994], basée sur la génération d'ultrasons, permet des observations en transmission et en réflexion. La mesure est fondée sur les différences de vitesses de propagation des ondes ultrasonores, qui dépendent du module de compression du milieu traversé. Cependant, la qualité des images est fortement dépendante du contraste entre les phases ; c'est ainsi que Ess et al. [1984] ont montré que les résultats sur des polypropylènes renforcés par des charges minérales ne sont pas satisfaisants.

D'autres techniques plus originales encore ont été développées et font appel à la diffraction optique [Polato et al., 1980], à l'imagerie infrarouge [Folkes et Potts, 1988] ou à la résonance magnétique nucléaire (RMN) [Koenig, 1994]. Notons aussi que dans le cas particulier de fibres cristallines ou semi-cristallines, la génération de figures de pôles par diffraction des rayons X peut permettre de déterminer astucieusement la distribution spatiale des orientations des fibres. Lim et al. [1988] ont utilisé cette méthode dans le cas de thermoplastiques renforcés de fibres de Kevlar®.

## **2. CHOIX DES MATERIAUX ET PREPARATION DES ECHANTILLONS**

L'étude bibliographique (Paragraphe 1.2) a montré qu'il existe une multitude de méthodes expérimentales permettant de mesurer la distribution d'orientation des fibres. Dans notre cas, l'état d'orientation tridimensionnel est recherché, aussi le nombre de techniques est plus restreint :

- la détermination par tomographie X semble être une méthode prometteuse, mais nous ne disposons pas du matériel nécessaire au laboratoire ;
- la technique par microscopie confocale à balayage laser est intéressante, c'est pourquoi nous avons contacté l'université de Leeds qui l'a mise au point : malheureusement, l'un des responsables de la mise au point de la méthode est parti du laboratoire et les mesures tridimensionnelles ont été abandonnées ; les mesures effectuées là-bas ne sont plus que bidimensionnelles. Nous avons alors fait des essais à l'ENSAM de Lille sur un microscope confocal avec un seul laser (en général, deux lasers sont utilisés), mais nous ne sommes jamais parvenus à faire des coupes optiques dans différentes profondeurs. D'autre part, ce microscope, qui n'est pas très récent, ne fournit que des images papier, car il n'est pas équipé de sortie numérique;
- les méthodes par microscopie optique en réflexion sont assez contraignantes, puisqu'elles nécessitent de procéder à plusieurs coupes, donc à plusieurs étapes de polissage.

Enfin, la méthode de variation de la tension en microscopie électronique à balayage semble s'imposer comme la technique la plus abordable, puisque nous disposons d'un tel microscope, et la plus facile à mettre en œuvre. Elle s'applique sur des échantillons minutieusement polis puis métallisés, et l'étape de préparation va être détaillée dans la partie qui suit.

## **2.1 Choix et caractérisation des matériaux**

### **a) Choix des matériaux**

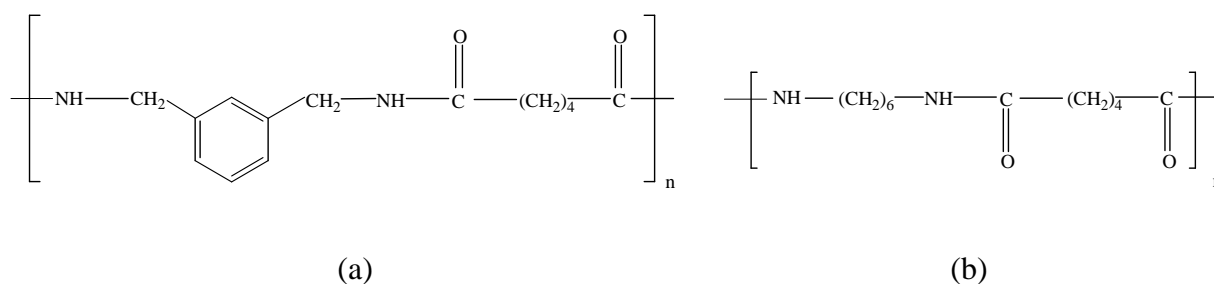
Les matériaux utilisés dans notre étude sont des thermoplastiques à base de polyarylamide (polyamide aromatique, semi-cristallin) renforcés de fibres de verres. Ils nous ont été fournis sous forme de granulés par Solvay et sont commercialisés sous le nom d'*IXEF*® (série 1000). Ces matériaux, dits « techniques », présentent un ensemble de caractéristiques intéressantes : très haute rigidité, facilité de mise en œuvre, faible retrait au moulage, excellent fini de surface, très faible coefficient de dilatation thermique et propriétés thermo-mécaniques élevées. Ces propriétés leur permettent de remplacer des alliages métalliques (aluminium, magnésium, zinc par exemple) dans de nombreux domaines. Les *IXEF*® sont notamment utilisés dans diverses applications automobiles (couvre-culasse, platine de rétroviseurs, boîtier de filtre à huile, cylindres d'embrayage, poignées de portières) par plusieurs fabricants de voiture (PSA, GM, VW, Fiat, Renault, ...), mais ils sont aussi employés dans des applications électriques domestiques (têtes de rasoirs électriques, pièces de fer à repasser et de machine à coudre) ou technologiques (coques de téléphone portable, raccords, pièces coulissantes des magnétoscopes, interrupteurs de sécurité)...

Leurs propriétés varient de grade à grade et dans notre cas, deux grades sont considérés et injectés :

- le grade 1002, qui contient 30% de fibres en poids, soit 16.5% en volume ;
- le grade 1022, qui contient 50% de fibres en poids, soit 31.6% en volume.

## b) Caractérisation des matériaux

La matrice utilisée est à base d'un polyamide aromatique appelé PA MXD6, synthétisé dès les années 1950 à partir de m-xylylènediamine et d'acide adipique [Lum et al., 1956] ; de nos jours, sa production se fait par polycondensation [Miyamoto et al., 1980]. On le connaît sous divers noms, comme poly(m-xylylène adipamide), MXD6, Nylon MXD6 ou PA MXD6. Sa structure chimique correspond au nylon 66 avec un noyau benzénique à la place des quatre groupes méthylène (Figure 1.7).



**Figure 1.7** : structure chimique du PA MXD6 (a) et comparaison avec le nylon 66 (b)

Comme le PA MXD6 pur ne cristallise pas facilement, Solvay y ajoute des agents nucléants (lamelles de talc et du PA66) et la résine obtenue est commercialisée sous le nom d'IXEF 6002.

L'IXEF 6002 constitue la matrice polymère de notre composite, qui est un polymère semi-cristallin, dont la température de transition vitreuse  $T_g$  est à environ 85°C ; sa température de fusion est de l'ordre de 238°C. Sous des conditions standard de mise en œuvre, le matériau a une température de cristallisation d'environ 200°C. Son coefficient de dilatation thermique donné par Solvay est très faible (Tableau 1.1), comparable à celui de certains métaux à température ambiante.

Les fibres sont des fibres courtes de verre de type E (E pour « electrical », car elles se caractérisent par une faible conductivité électrique), de diamètre 10µm. A l'origine, les fibres ont une longueur de 4.5mm, mais elles sont cassées pendant le mélangeage des IXEF® et pendant la phase d'injection ; il en résulte une distribution de longueurs qui s'étend de 20µm à 600µm environ. On adopte généralement une valeur moyenne de longueur après injection, qui est de 250µm. Ces fibres sont traitées en surface (enzymage) afin d'être compatible avec les nylons et ainsi d'avoir une très bonne adhésion.

Les données des fournisseurs concernant les principales propriétés physiques et thermo-mécaniques de chacun des constituants, à température ambiante, sont récapitulées dans le tableau 1.1.

	$\rho$ [g/cm <sup>3</sup> ]	E [GPa]	$\nu$	$\alpha$ [K <sup>-1</sup> ]
Matrice	1.2	4	0.36	$6 \cdot 10^{-5}$
Fibre	2.6	74	0.25	$5 \cdot 10^{-6}$

**Tableau 1.1** : propriétés physiques et thermo-mécaniques des constituants à température ambiante

Concernant les composites 1002 et 1022, les caractéristiques des produits injectés données par le fournisseur, à température ambiante et dans les directions longitudinale L et transversale T, sont récapitulées dans le tableau 1.2.

	$\rho$ [g/cm <sup>3</sup> ]	$E_L$ [GPa]	$\alpha_L$ [K <sup>-1</sup> ]	$\alpha_T$ [K <sup>-1</sup> ]
Grade 1002	1.43	11.5	$1.8 \cdot 10^{-5}$	
Grade 1022	1.64	20	$1.5 \cdot 10^{-5}$	$4.6 \cdot 10^{-5}$

**Tableau 1.2** : propriétés physiques et thermo-mécaniques des deux grades à température ambiante

## 2.2 Préparation des échantillons

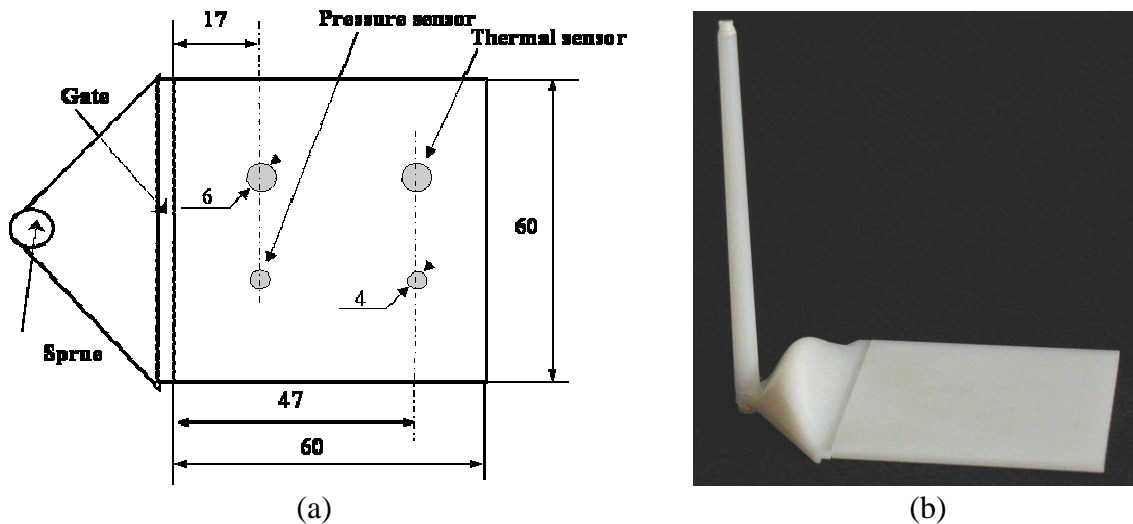
Notre but est de mesurer expérimentalement la distribution tridimensionnelle des fibres dans des composites avec deux taux de fibres différents (grades 1002 et 1022). Pour cela, la première étape est logiquement l'injection de plaques et nous allons détailler dans la partie qui suit les conditions d'injection. Ensuite, des échantillons sont découpés dans ces plaques et sont soigneusement polis afin d'être observés avec un microscope électronique à balayage : l'état d'orientation pourra être déterminé en microscopie électronique à balayage par variation de la tension, selon la technique expliquée dans le paragraphe 1.2.

### a) Conditions d'injection

Le moule que nous avons utilisé a été conçu lors d'un projet précédent [Luyé, 1999] : il se compose de deux cavités carrées de 60x60 mm<sup>2</sup> avec deux épaisseurs, de 1 mm et 3 mm (Figure 1.8-a).

Un système d'alimentation spécial, en bosse (Figure 1.8-b), a été mis au point pour assurer un front de matière droit et parallèle pendant toute la phase de remplissage, ce qui a été vérifié par l'injection d'incomplets.

Lors de l'injection des IXEF, et en particulier pour les plaques de 3 mm, nous avons rencontré des problèmes de jet libre. Les seuils d'injection, initialement fixés à 0.8 mm pour les plaques de 1 mm et à 1.5 mm pour les plaques de 3 mm, ont alors été modifiés par LEGRAND : en fait ils ont été éliminés, de sorte que la nappe d'alimentation alimente les deux cavités sans restriction d'épaisseur.



**Figure 1.8** : représentation du moule utilisé (a) et du système d'alimentation (b)

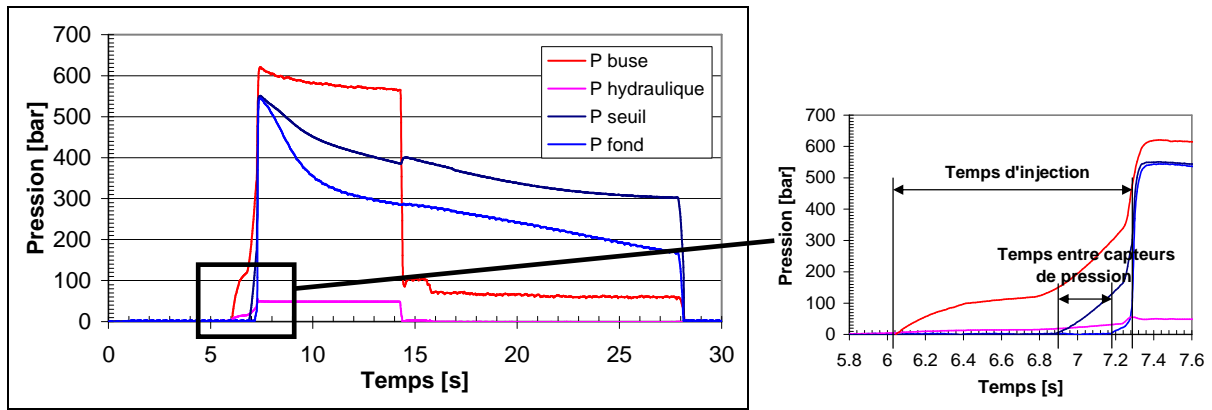
Les matériaux ont été injectés dans une presse à injecter DK Codim 175-400. Les paramètres de mise en œuvre des deux grades 1002 et 1022 sont récapitulés dans le tableau 1.3. On a fait varier l'épaisseur de la plaque : des plaques de 1 mm et 3 mm ont été injectées. La vitesse d'injection choisie correspond à un temps de 0.30s entre les deux capteurs de pression, espacés de 30 mm (Figure 1.8-a) ; ceci représente un temps d'injection de 1.25s. La matrice (IXEF 6002), en revanche, n'a été injectée que sous forme de plaques de 3 mm.

	$T_{\text{injection}} [^{\circ}\text{C}]$	$T_{\text{moule}} [^{\circ}\text{C}]$	$P_{\text{maintien}} [\text{MPa}]$	$t_{\text{maintien}} [\text{s}]$	$t_{\text{refroidissement}} [\text{s}]$
1 mm	280	130	60	7	20
3 mm	280	130	40	18	45

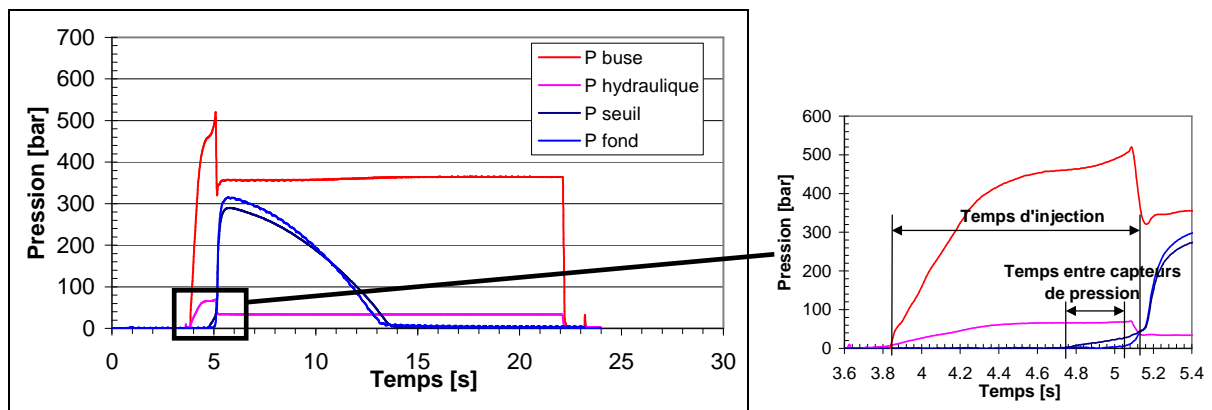
**Tableau 1.3** : paramètres d'injection pour des plaques de 1 mm et 3 mm des grades 1002 et 1022

A titre d'exemple, les profils des pressions au cours du temps lors de l'injection d'une plaque de 1 mm du grade 1002 et d'une plaque de 3 mm du grade 1022 sont montrés sur la figure 1.9.

Des essais réalisés par Solvay ont montré qu'il est essentiel que la température du moule soit comprise entre 120°C et 140°C afin d'atteindre le maximum de cristallinité pendant l'injection : une pièce moulée à une température plus basse aura une reprise en eau plus importante, un risque de distorsion par post-cristallisation lors d'une chauffe au dessus de la température de transition vitreuse, un mauvais aspect de surface et de moins bonnes propriétés mécaniques, notamment en fluage. C'est la raison pour laquelle nous avons fixé la température du moule à 130°C.



a) Grade 1002, plaque de 1 mm

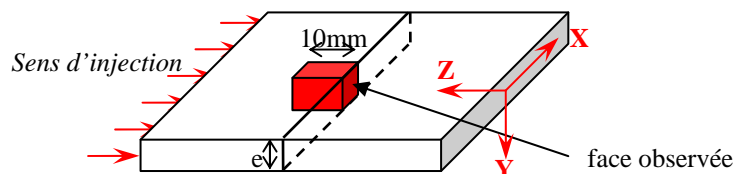


a) Grade 1022, plaque de 3 mm

**Figure 1.9 :** évolution de la pression au cours du temps lors de l’injection des grades 1002 et 1022

## b) Préparation des échantillons

Dès lors que les plaques de 1 mm et 3 mm sont injectées, des échantillons de  $10 \times 10 \times e$  mm<sup>3</sup> (avec  $e=1$  ou 3 mm) y sont découpés. Nous avons décidé d’étudier la distribution d’orientation des fibres en fonction de l’épaisseur et au milieu de la plaque. Dans ce but, les échantillons sont découpés perpendiculairement à la direction d’injection et au centre de la pièce, comme indiqué sur la figure 1.10.



**Figure 1.10 :** échantillon perpendiculaire à la direction d’injection, découpé au centre de la plaque

Ensuite les échantillons à étudier sont enrobés à froid dans une résine type époxy (résine *Mecaprex MA 2* chez *PRESI®*), dans laquelle on a préalablement ajouté quelques gouttes de durcisseur. Le temps de durcissement est de 12h à température ambiante.

Pour pouvoir être analysés par microscopie, les échantillons enrobés doivent alors être polis. La fiabilité des résultats de mesures d'orientation dépend fortement de la qualité de la préparation des surfaces à analyser. Afin d'obtenir un bon état de surface, présentant une faible proportion de fibres cassées et engendrant un bon contraste entre les phases, on a étudié l'influence de la pression, du temps et de la vitesse de rotation au cours de différentes étapes de polissage avec des granulométries de plus en plus fines. Il en ressort une optimisation de la préparation des échantillons dans le cas des matériaux *IXEF®* et le protocole proposé est détaillé dans le tableau 1.4 : les premières étapes du polissage se font à l'aide de disques abrasifs de granulométrie de plus en plus fine (de 800 à 4000, soit de 22 $\mu$ m à 5 $\mu$ m), sous arrosage d'eau, alors que la dernière étape utilise un disque spécial adapté à l'utilisation d'une suspension colloïdale de silice (OPS), qui contient des particules de 0.04 $\mu$ m.

Granulométrie	Vitesse de rotation [rpm]	P [daN]	t [min]
800	250	5	2
1200	250	5	2
2400	250	10	4
4000	250	10	4
OPS	150	1	5

**Tableau 1.4** : protocole de polissage proposé pour la préparation des *IXEF®*

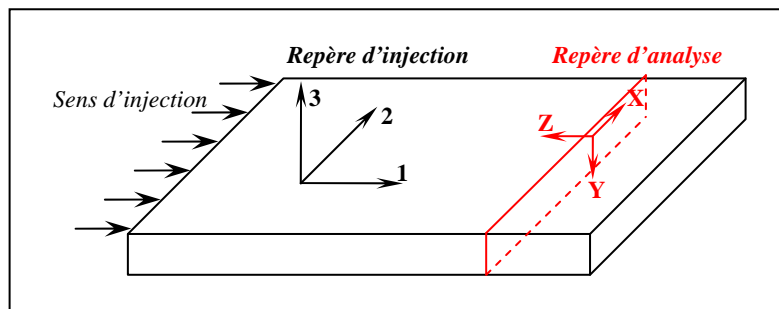
Pour minimiser le temps de préparation des échantillons, nous utilisons une polisseuse semi-automatique, qui permet de traiter six échantillons à la fois.

La dernière étape avant l'observation au MEB est la métallisation, qui doit être elle aussi optimisée, car on sait que si on métallise trop, on ne pourra pas observer dans l'épaisseur de l'échantillon (donc on ne verra pas l'ombre représentant le sens de fuite de la fibre), alors que si on ne métallise pas assez, le matériau aura tendance à se charger. Après des essais préliminaires, nous avons choisi un temps de dépôt sous la cloche du métalliseur or d'environ 1min30 (pour 1.2kV et 5mA), ce qui correspond à une couche d'or d'environ 150 Å. Il faut aussi noter que les matériaux étudiés (polyarylamide et verre) sont de bons isolants électriques, donc pour éviter des surcharges à la surface des échantillons, sous l'effet du bombardement électronique, on crée des ponts conducteurs avec du ruban adhésif de carbone, entre la surface métallisée et le porte-échantillon.



### 3. MESURE EXPERIMENTALE DE LA DISTRIBUTION 3D D'ORIENTATION D'UN ECHANTILLON INJECTE

Dans cette partie, nous allons faire la distinction entre le repère (X,Y,Z) relatif au plan de coupe et le repère de référence, dans lequel les résultats d'orientation sont exprimés. Notre repère de référence est le repère d'injection (1,2,3), défini tel que l'axe 1 est la direction d'écoulement du polymère, l'axe 2 est la direction transverse et l'axe 3 représente l'épaisseur de la pièce (direction normale au plan d'injection), comme indiqué sur la figure 1.11.



**Figure 1.11** : définition du repère relatif au plan de coupe (X,Y,Z) et du repère d'injection (1,2,3)

Dans le repère d'injection, on définit l'orientation d'une fibre par deux angles  $\phi'$  et  $\theta'$ , tels que :

- $\phi'$  est l'angle dans le plan d'injection, par rapport à l'axe 1 ;
- $\theta'$  est l'angle hors du plan, par rapport à l'axe 3.

Pour des raisons de symétrie de distribution, l'angle  $\phi'$  est défini de  $[-90^\circ, 90^\circ]$  et l'angle  $\theta'$  de  $[0^\circ, 180^\circ]$ .

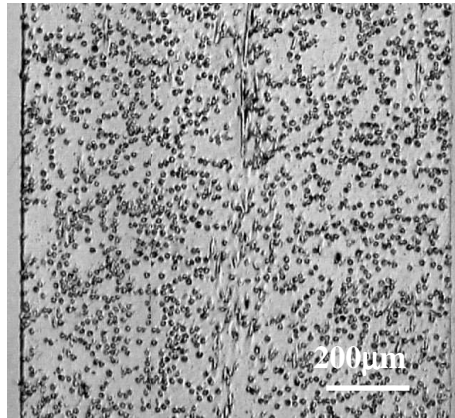
Nous avons vu dans le paragraphe 1.1 qu'il existe plusieurs façons de caractériser l'orientation. Parmi celles-ci, les fonctions de distribution d'orientation et les tenseurs d'orientation sont des outils mathématiques qui s'intègrent bien dans les modélisations (nous le verrons dans la partie 2), quand la distribution d'orientation des fibres est prise en compte. Aussi dans la suite, on se limitera à ces deux types de descripteurs de l'état d'orientation.

#### 3.1 Protocole expérimental

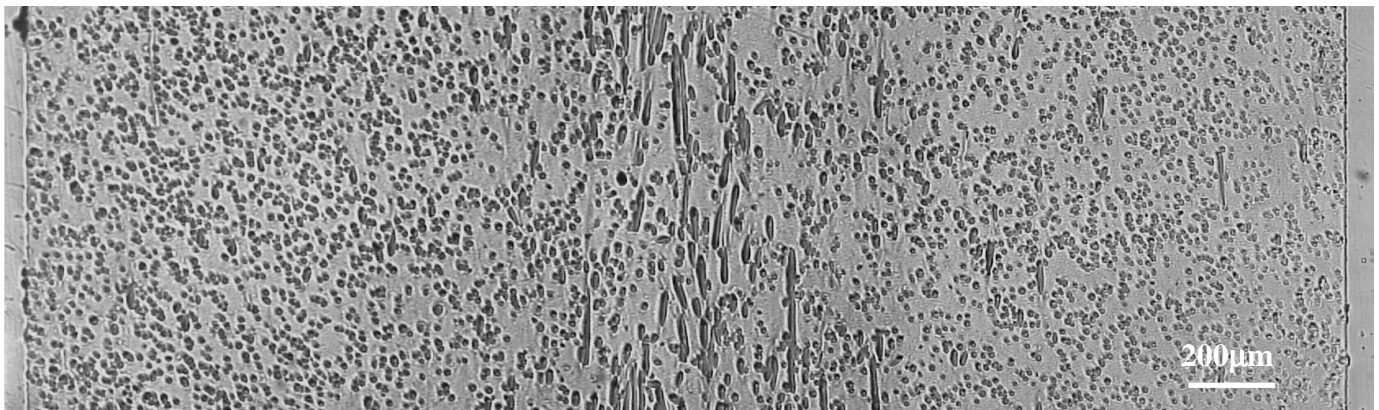
Le protocole expérimental a été mis au point en collaboration avec le laboratoire d'Ingénierie des Procédés de l'Ecole des Mines d'Albi, notamment avec le Professeur Fabrice Schmidt, ainsi que Eric Jourdain et Sabine Leroux.

### a) Mise au point de la méthode

Des observations au microscope optique ont montré que la distribution des fibres dans l'épaisseur d'un matériau injecté n'est pas homogène (Figure 1.12). C'est pourquoi l'étude de l'évolution de l'état d'orientation en fonction de l'épaisseur est primordiale.



a)

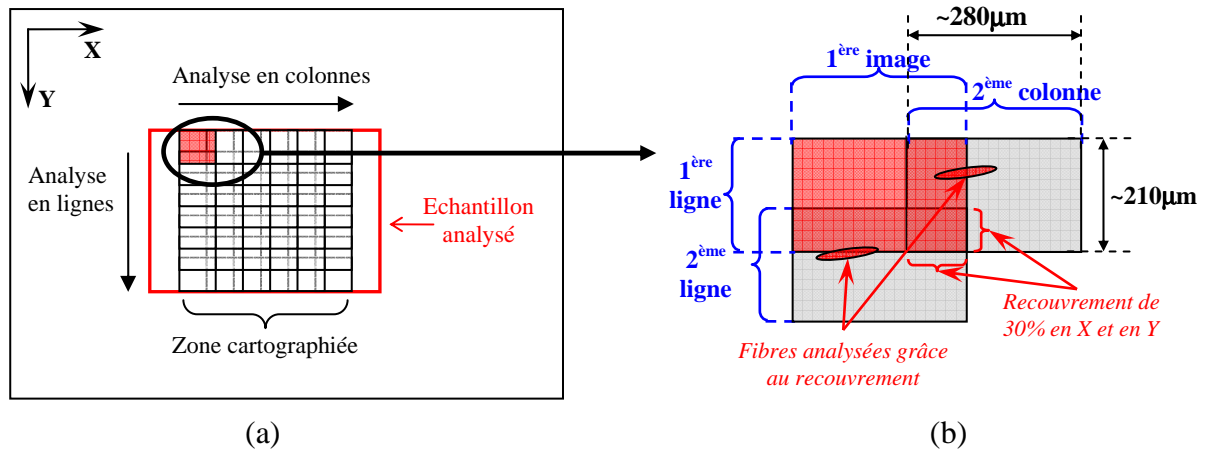


b)

**Figure 1.12** : orientation des fibres dans l'épaisseur d'un échantillon injecté de 1 mm (a) et de 3 mm (b) du grade 1002. Image prise en microscopie optique en coupe orthogonale à la direction d'injection

Pour être représentatif, l'état d'orientation à une profondeur donnée est obtenu en moyennant l'orientation de plusieurs images consécutives se trouvant à la même profondeur. Pour analyser l'échantillon entier de manière méthodique, on réalise une cartographie en lignes et en colonnes à travers l'épaisseur de la pièce (Figure 1.13-a) ; au total une quarantaine d'images sont saisies pour un échantillon de 3 mm sur la moitié de l'épaisseur.

Les fibres en contact avec le bord de l'image ne sont pas prises en compte dans l'analyse, donc un certain nombre de fibres (en particulier celles qui apparaissent comme de grandes ellipses) échappent à l'analyse. Pour remédier à cela, un recouvrement de 30% entre les images successives de la cartographie est établi (Figure 1.13-b).



**Figure 1.13** : cartographie de l'échantillon analysé (a) et recouvrement des images (b)

Chaque image est ensuite traitée deux fois avec le logiciel d'analyse d'images, en considérant deux niveaux de seuillage (Paragraphe 1.2.1-b). Des filtres sont employés pour nettoyer les images d'objets indésirables (éclats de fibre dus au polissage, par exemple) et pour séparer les fibres agglomérées.

Les caractéristiques pertinentes des deux images seuillées sont alors déterminées par le logiciel d'analyse d'images, puis stockées dans deux fichiers distincts : il s'agit des dimensions  $a^k$  et  $b^k$ , de l'angle  $\phi^k$  et des coordonnées du centre de gravité  $G^k$  de chaque ellipse. Il faut ensuite, pour chacune des fibres détectées sur l'image en seuillage haut, trouver la fibre correspondante parmi celles détectées en seuillage bas.

L'identification des deux ellipses représentant la même fibre se fait en comparant les fichiers de données. Deux ellipses sont appariées si les coordonnées du vecteur déplacement du centre de gravité  $\overline{G_b^k G_h^k}$  vérifient :

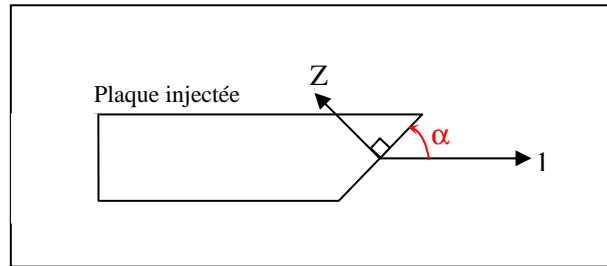
$$\Delta x_G < 0.2D \quad \text{et} \quad \Delta y_G < 0.2D \quad (1.35)$$

où  $D$  est le diamètre des fibres ( $10\mu\text{m}$ ). Si une ambiguïté persistait en deux fibres, l'appariement serait effectué en minimisant la différence entre les angles  $\phi^k$ .

Finalement, un tableau unique regroupe les informations extraites des deux tableaux de données « haut » et « bas ». Il comprend :

- le numéro  $k$  de la fibre analysée,
- les dimensions  $a^k$  et  $b^k$  de l'ellipse, mesurées sur l'image en seuillage haut (sans l'ombre),
- l'angle  $\phi^k$  mesuré sur l'image en seuillage haut,
- les coordonnées du vecteur  $\overline{G_b^k G_h^k}$ ,
- et l'angle  $\theta^k$  calculé à partir de  $a^k$ ,  $b^k$  et du signe du scalaire  $\overline{G_b^k G_h^k} \cdot \overline{\phi x^k}$ , où  $\overline{\phi x^k}$  (Figure 1.6) est le vecteur unitaire orienté faisant un angle  $\phi^k$  dans le plan de coupe (X,Y) par rapport à l'axe X.

Ainsi les coordonnées  $(\phi^k, \theta^k)$  de chaque fibre sont obtenues dans le repère d'analyse (X,Y,Z). Il s'agit alors de les transformer dans le repère de référence (1,2,3). Pour une coupe effectuée à un angle  $\alpha$  par rapport à la direction d'injection (Figure 1.14), les règles de transformation sont obtenues par rotation du repère (X,Y,Z).



**Figure 1.14** : représentation de l'angle de coupe  $\alpha$  par rapport à l'axe 1

On obtient simplement :

$$\begin{cases} \theta'^k = \cos^{-1}(-\sin \theta^k \sin \phi^k \sin \alpha + \cos \theta^k \cos \alpha) \\ \phi'^k = \tan^{-1}\left(\frac{-\sin \theta^k \cos \phi^k}{\sin \theta^k \sin \phi^k \cos \alpha + \cos \theta^k \sin \alpha}\right) \end{cases} \quad (1.36)$$

Le processus de traitement d'une image prise au microscope électronique à balayage (MEB) est résumé sur la figure 1.15 : bien sûr, il doit être appliqué à toutes les images d'une même ligne (moyenne à une profondeur donnée), puis à toutes les lignes (évolution dans l'épaisseur de la pièce).

Il est important de bien noter que pour chaque coupe, une population d'au minimum 2000 fibres est considérée, c'est pourquoi le procédé d'appariement des fibres et de détermination de l'angle  $\theta$  a été automatisé grâce à la mise au point d'un programme que nous avons écrit sous *Matlab*®. D'une manière plus précise, ce programme permet :

- de prendre en compte le recouvrement, pour éviter de dénombrer plusieurs fois une même fibre apparaissant sur deux images successives ;
- de considérer l'échelle des images analysées ;
- de procéder automatiquement à l'appariement des fibres à partir des fichiers obtenus en seuillages haut et bas et de dresser un tableau de données unique par image MEB ;
- d'appliquer le facteur correctif (Eq.1.26) en fonction de l'inclinaison et la longueur des fibres ;
- de prendre en compte l'orientation du repère d'analyse par rapport au repère de référence et d'exprimer les données d'orientation dans le repère d'injection de la pièce ;
- d'exploiter les données en caractérisant l'orientation (sous forme de tenseurs ou de fonction de distribution d'orientation) soit d'une seule image, soit d'une zone entière cartographiée.

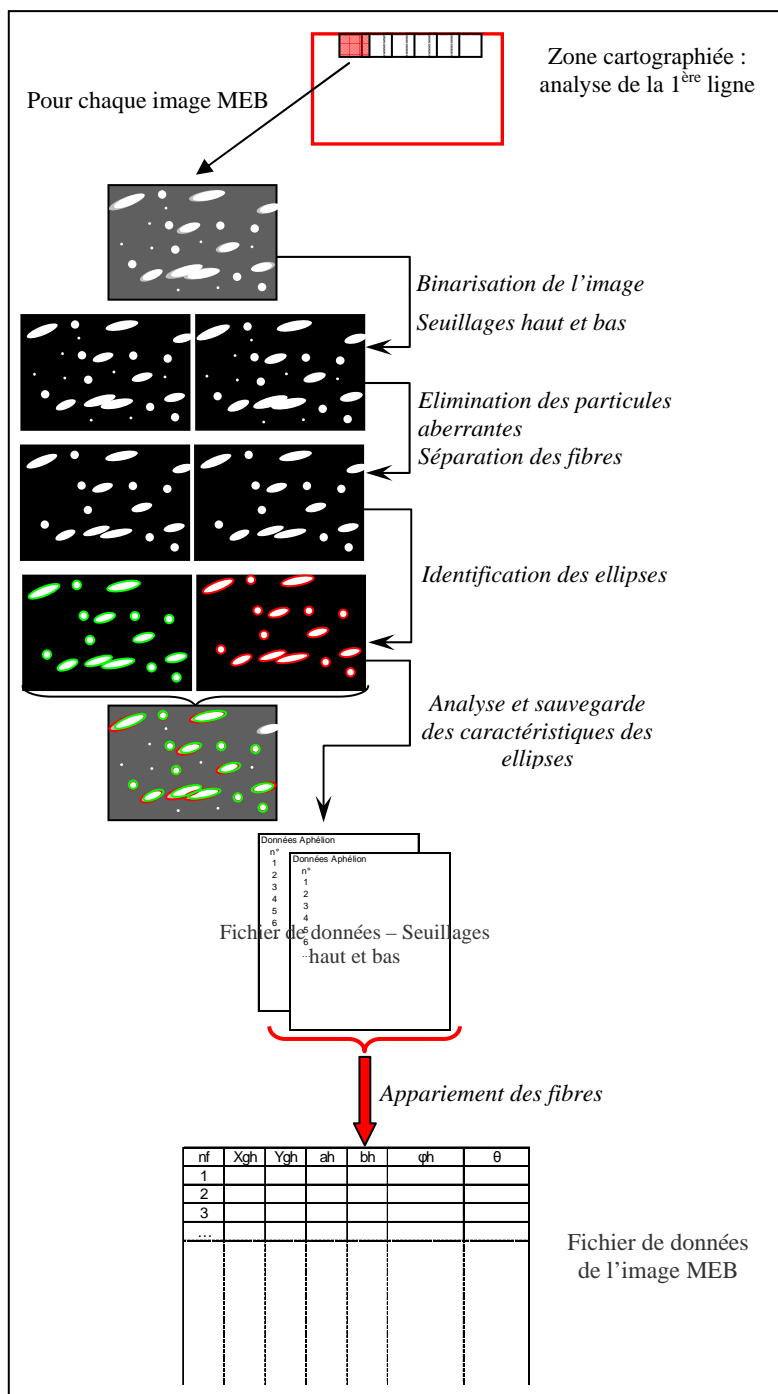
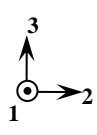
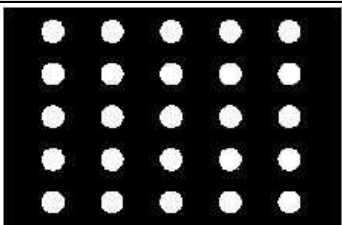
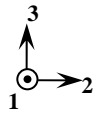
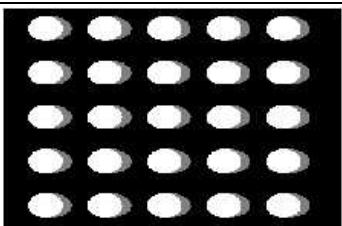
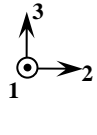
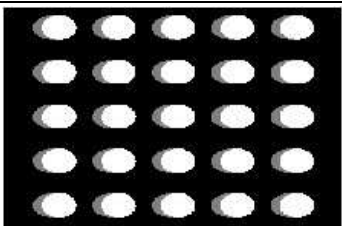
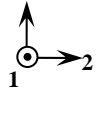
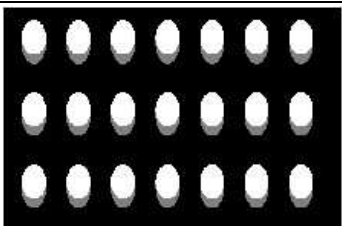
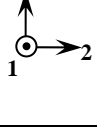
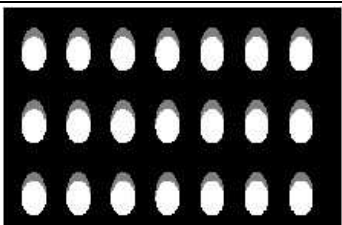


Figure 1.15 : processus de traitement d'une image prise au microscope électronique à balayage

### b) Validation du programme sur des images de référence

Avant de procéder à des analyses sur des échantillons d'orientations inconnues, il nous a paru prudent de vérifier le programme *Matlab*®, en utilisant une série d'images de référence d'orientations connues. On a choisi de considérer le cas très simple de composites parfaitement unidirectionnels, où les fibres sont orientées à différents angles, et un plan de coupe perpendiculaire à la direction 1. Chacune des images de référence représente l'intersection des fibres avec le plan (2,3). Les résultats

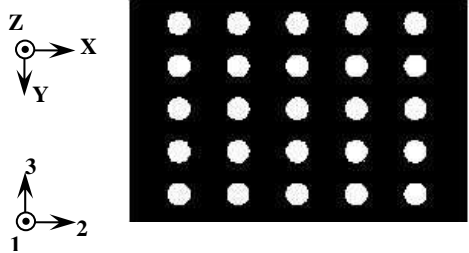
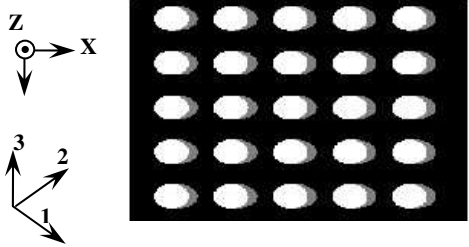
obtenus par l'analyse sous *Matlab*® sont détaillés sur la figure 1.16 et sont comparés aux résultats théoriques.

Image de référence	Tenseur obtenu	Tenseur théorique
$\theta' = 90^\circ$ $\phi' = 0^\circ$   Fibres parallèles à l'axe 1	$\begin{bmatrix} 0,95 & 0,02 & 0,1 \\ 0,02 & 0,03 & 0 \\ 0,1 & 0 & 0,02 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
$\theta' = 90^\circ$ $\phi' = -45^\circ$   Fibres à $-45^\circ$ dans plan (1,2)	$\begin{bmatrix} 0,51 & -0,5 & 0 \\ -0,5 & 0,49 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0,5 & -0,5 & 0 \\ -0,5 & 0,5 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
$\theta' = 90^\circ$ $\phi' = 45^\circ$   Fibres à $+45^\circ$ dans plan (1,2)	$\begin{bmatrix} 0,49 & 0,5 & 0 \\ 0,5 & 0,51 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0,5 & 0,5 & 0 \\ 0,5 & 0,5 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
$\theta' = -45^\circ$ $\phi' = 0^\circ$   Fibres à $-45^\circ$ dans plan (1,3)	$\begin{bmatrix} 0,5 & 0,01 & -0,5 \\ 0,01 & 0 & -0,01 \\ -0,5 & -0,01 & 0,5 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0,5 & 0 & -0,5 \\ 0 & 0 & 0 \\ -0,5 & 0 & 0,5 \end{bmatrix}$
$\theta' = 45^\circ$ $\phi' = 0^\circ$   Fibres à $+45^\circ$ dans plan (1,3)	$\begin{bmatrix} 0,5 & 0 & 0,5 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0,5 & 0 & 0,5 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0,5 & 0 & 0,5 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0,5 & 0 & 0,5 \end{bmatrix}$

**Figure 1.16** : analyse des images de référence pour cinq orientations de fibres différentes

On précise que les images de référence ont été simplement réalisées avec l'outil de dessin sous MS Word®, puis exportées sous le format JPEG pour être exploitables par le logiciel d'analyse d'images. Les résultats obtenus par l'analyse (Figure 1.16) sont présentés sous forme de tenseurs d'orientation d'ordre 2. On constate que l'écart entre les composantes mesurées avec notre programme et les composantes théoriques du tenseur reste inférieur à 5%.

Nous avons aussi vérifié que nos opérations de changement de base sont correctes. Pour cela, on considère un composite unidirectionnel, où les fibres sont parallèles à l'axe 1. Puis on considère deux repères d'analyse différents : dans le 1<sup>er</sup> cas, le plan de coupe (X,Y,Z) est perpendiculaire à l'axe 1 ; dans le 2<sup>ème</sup> cas, il est à 45° par rapport à l'axe 1. Les coordonnées du repère (X,Y,Z) dans le repère de référence (1,2,3), ainsi que les tenseurs obtenus pour les deux coupes sont montrés sur la figure 1.17.

Image de référence	Coordonnées de (X,Y,Z) dans le repère (1, 2, 3)	Tenseur
	$X = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}; Y = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{bmatrix}; Z = \begin{bmatrix} -1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0,95 & 0,02 & 0,1 \\ 0,02 & 0,03 & 0 \\ 0,1 & 0 & 0,02 \end{bmatrix}$
	$X = \begin{bmatrix} \sqrt{2}/2 \\ \sqrt{2}/2 \\ 0 \end{bmatrix}; Y = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{bmatrix}; Z = \begin{bmatrix} -\sqrt{2}/2 \\ \sqrt{2}/2 \\ 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1 & 0 & 0,1 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0,1 & 0 & 0 \end{bmatrix}$

**Figure 1.17** : opérations de changement de base. Coupes orthogonale et à 45° d'un même échantillon dont les fibres sont toutes orientées selon l'axe 1

On constate que les résultats sont proches et que par conséquent, le changement de base introduit dans le programme est correct. On remarque aussi que le tenseur obtenu par la coupe orthogonale introduit une erreur de 5% sur la composante  $a_{11}$ , même si le cas traité est idéal (les fibres sont parfaitement alignées), alors que la coupe à 45° engendre un tenseur plus conforme au résultat théorique. Ceci est dû au fait qu'une faible variation de mesure sur les diamètres d'un cercle entraînent une variation importante de l'angle  $\theta$ .

Comme notre programme a été validé avec des cas très simples, nous pouvons maintenant l'appliquer à nos plaques injectées.

### 3.2 Résultats pour des coupes orthogonales à la direction d'injection

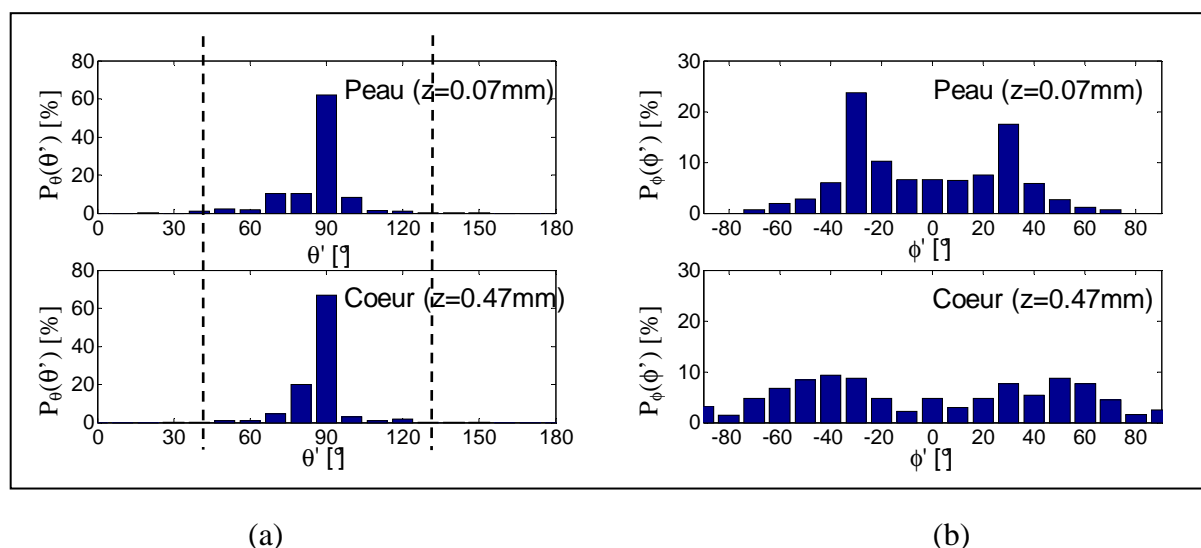
Dans la plupart des travaux, les échantillons sont découpés et polis dans un plan perpendiculaire à la direction préférentielle des fibres [Clarke et al., 1993, 1995 ; Avèrous, 1995 ; Avèrous et al., 1997, 1998]. Dans le cas de l'injection, on sait que les fibres sont majoritairement orientées dans le sens

d'écoulement (direction 1) [Karger-Koicis, 1989 ; Bailey et Rzepka, 1991], c'est pour cette raison que nous avons choisi un plan de coupe normal à l'axe 1 et parallèle au plan (2,3).

La procédure, telle que décrite dans le paragraphe 3.1, est appliquée aux deux composites 1002 et 1022, injectés sous forme de plaques de 1 mm et 3 mm.

### a) IXEF 1002 – plaque de 1 mm d'épaisseur

Les résultats sont dans un premier temps montrés sous forme de fonctions de distribution de probabilité d'orientation  $P_\theta(\theta')$  et  $P_\phi(\phi')$ , où les angles  $(\theta', \phi')$  sont définis dans le repère d'injection (1,2,3). Expérimentalement, on a divisé l'épaisseur en six couches et on a mesuré les données d'orientation dans chacune d'elles ; la surface analysée par couche est d'environ 0.25x2.30 mm<sup>2</sup> (ce qui correspond à environ 500 fibres). Pour des raisons pratiques, seules les distributions d'orientation en peau et au cœur de la plaque de 1 mm sont montrées ici (Figure 1.18).



**Figure 1.18** : fonctions de distribution de probabilité d'orientation obtenues par coupe orthogonale, dans le cas d'un polyarylamide renforcé de 30% de fibres de verre et pour une plaque injectée de 1 mm d'épaisseur. Distributions en fonction de l'angle  $\theta'$  (a) et en fonction de  $\phi'$  (b)

On constate qu'en peau, comme au cœur, les valeurs de  $\theta'$  sont majoritairement égales à 90° (Figure 1.18-a), ce qui implique que la distribution est principalement dans le plan d'injection ou plan (1,2). On peut aller plus loin et considérer, d'après les résultats de  $P_\theta(\theta')$ , que les valeurs de  $\theta'$  sont pratiquement toutes comprises entre 45° et 135° (droites en pointillés sur la figure 1.18-a).

En revanche, concernant la distribution d'orientation en fonction de l'angle  $\phi'$ , on note curieusement deux valeurs prédominantes à  $\pm 30^\circ$ , en peau comme au cœur. Ces résultats sont surprenants, puisqu'on sait qu'en injection, la plupart des fibres sont orientées dans la direction d'écoulement : on attendait alors des valeurs de  $\phi'$  proches de 0°.



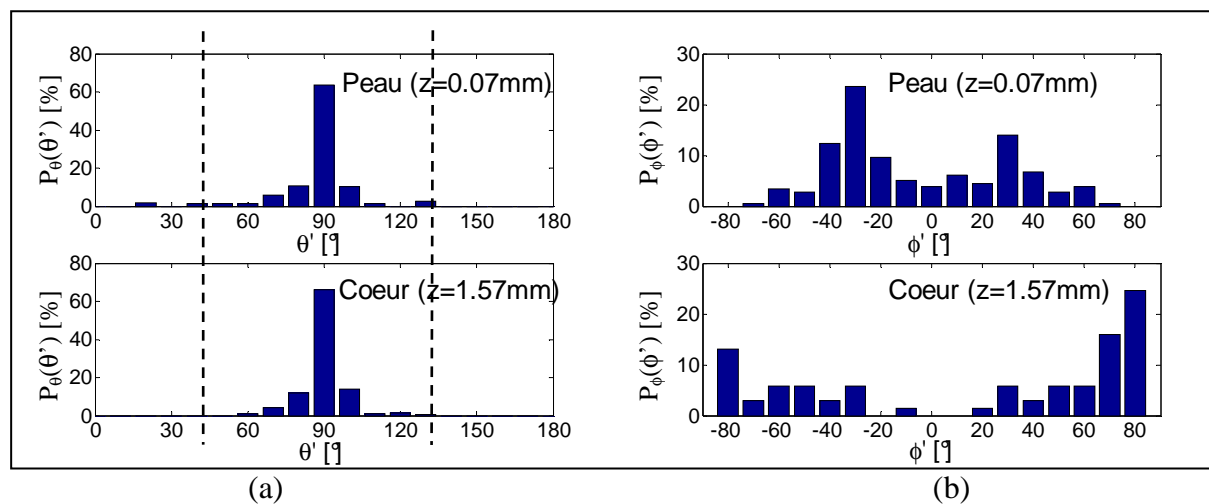
Le tenseur d'orientation d'ordre 2 vaut sur l'ensemble de l'épaisseur :

$$[a_{ij}] = \begin{bmatrix} 0.59 & -0.04 & -2 \times 10^{-3} \\ -0.04 & 0.37 & 5 \times 10^{-3} \\ -2 \times 10^{-3} & 5 \times 10^{-3} & 0.04 \end{bmatrix}$$

Ici encore les résultats sont curieux, car même si les composantes  $a_{11}$  et  $a_{22}$  sont les plus importantes (ce qui se traduit par une distribution majoritairement dans le plan (1,2)), on constate que  $a_{11}$  n'est que légèrement supérieur à  $a_{22}$ , donc que les fibres sont à peine plus orientées dans la direction d'écoulement que dans la direction transverse.

### b) IXEF 1002 – plaque de 3 mm d'épaisseur

Pour des plaques plus épaisses (et notamment de 3 mm), on sait que la structure cœur-peau de la distribution est plus marquée. Pour le vérifier, l'épaisseur de 3 mm a été divisée en 24 couches ; la surface analysée par couche est d'environ  $0.18 \times 1.40 \text{ mm}^2$  (soit à peu près 220 fibres). La distribution de probabilité d'orientation mesurée expérimentalement, en fonction des angles  $\theta'$  et  $\phi'$ , est montrée pour les deux couches correspondant à la peau et au cœur sur la figure 1.19.



**Figure 1.19** : fonctions de distribution de probabilité d'orientation obtenues par coupe orthogonale, dans le cas d'un polyarylamide renforcé de 30% de fibres de verre et pour une plaque injectée de 3 mm d'épaisseur. Distributions en fonction de l'angle  $\theta'$  (a) et en fonction de  $\phi'$  (b)

Là encore, les valeurs de  $\theta'$  sont majoritairement égales à  $90^\circ$  et peuvent être contenues dans un intervalle variant de  $45^\circ$  à  $135^\circ$  ; concernant les valeurs de  $\phi'$ , une distribution *a priori* aberrante est obtenue en peau, puisque deux pics apparaissent clairement à  $\pm 30^\circ$ , alors qu'au cœur, la distribution est correcte, avec des valeurs tendant vers  $\pm 90^\circ$ .

Le tenseur d'orientation correspondant sur toute l'épaisseur est égal à :

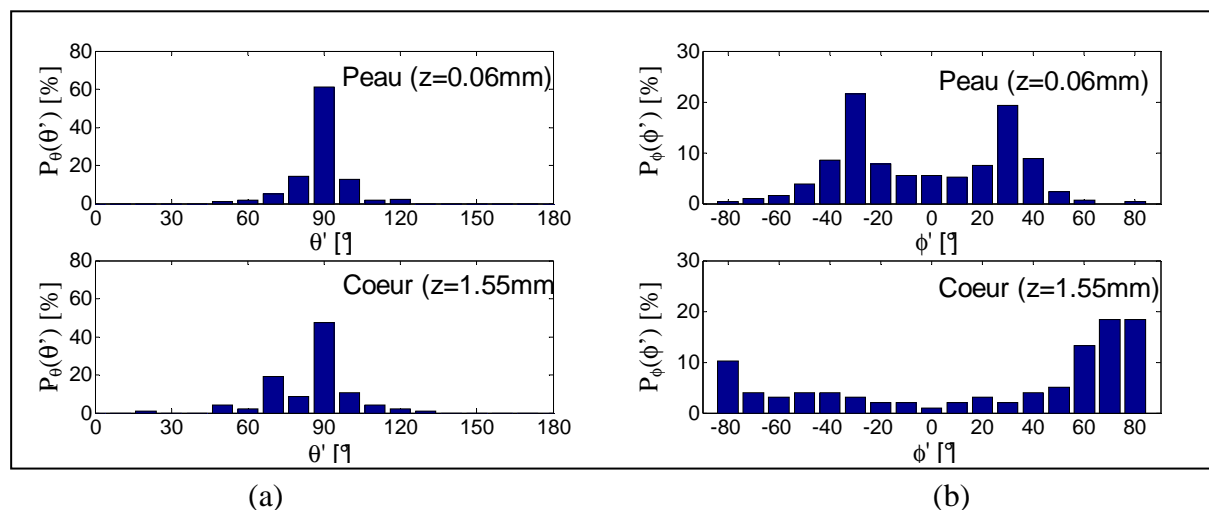
$$[a_{ij}] = \begin{bmatrix} 0.55 & -0.02 & 3 \times 10^{-3} \\ -0.02 & 0.41 & -6 \times 10^{-3} \\ 3 \times 10^{-3} & -6 \times 10^{-3} & 0.04 \end{bmatrix}$$

L'écart entre les composantes  $a_{11}$  et  $a_{22}$  est logiquement plus serré que pour les plaques de 1 mm, car plus de fibres sont orientées dans la direction 2, mais reste trop faible par rapport aux résultats habituellement obtenus sur des matériaux injectés.

### c) IXEF 1022 – plaque de 3 mm d'épaisseur

Nous allons vérifier si cette tendance d'orientation à  $\pm 30^\circ$  dans le plan de coupe est toujours mesurée quand une fraction volumique de fibres plus importante est considérée : dans les résultats précédents (a et b), le matériau contenait 30% de fibres en poids; il en contient désormais 50%. Nous nous sommes limités pour le grade 1022 à une plaque de 3 mm, car la répartition des fibres y est différente en peau et au cœur.

L'épaisseur de 3 mm a également été divisée en 24 couches et la surface analysée par couche est d'environ  $0.18 \times 0.70 \text{ mm}^2$  (soit à peu près 230 fibres). Les distributions de probabilité d'orientation en peau et en cœur sont représentées sur la figure 1.20 ; on remarquera que les mêmes observations que pour le grade 1002 s'appliquent quant à la distribution des angles  $\theta'$  et  $\phi'$ .



**Figure 1.20** : fonctions de distribution de probabilité d'orientation obtenues par coupe orthogonale, dans le cas d'un polyarylamide renforcé de 50% de fibres de verre et pour une plaque injectée de 3 mm d'épaisseur. Distributions en fonction de l'angle  $\theta'$  (a) et en fonction de  $\phi'$  (b)

Le tenseur d'orientation correspondant sur toute l'épaisseur est :

$$[a_{ij}] = \begin{bmatrix} 0.54 & -0.03 & -4 \times 10^{-3} \\ -0.03 & 0.41 & 4 \times 10^{-3} \\ -4 \times 10^{-3} & 4 \times 10^{-3} & 0.05 \end{bmatrix}$$

Il est très proche de celui obtenu pour le grade 1002.

#### d) Synthèse

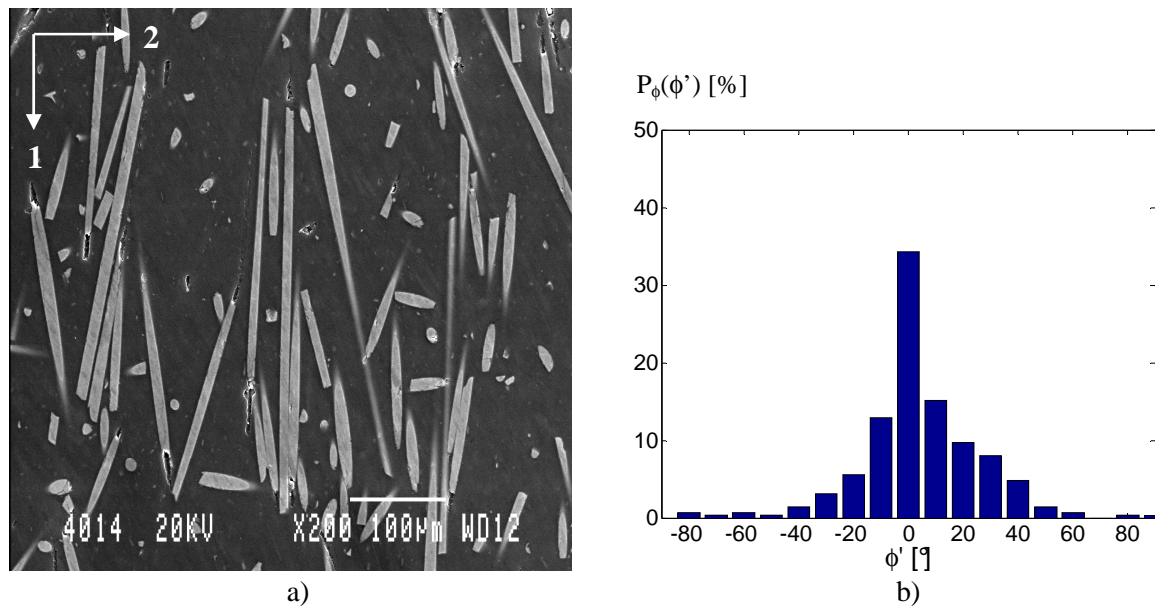
D'après les résultats ci-dessus, on constate que la distribution des fibres est dans tous les cas (grades 1002 et 1022 ; plaques de 1 mm et 3 mm) majoritairement dans le plan d'injection, mais pas strictement, puisque par exemple la composante  $a_{33}$  du tenseur d'orientation n'est pas nulle. De manière plus précise, on peut considérer que les valeurs de  $\theta'$  sont comprises dans un intervalle variant de  $45^\circ$  à  $135^\circ$ , centré autour du plan d'injection. Cette information est importante et va nous être utile dans la suite.

Concernant la distribution en fonction de l'angle  $\phi'$  en peau, comme deux valeurs prédominantes apparaissent à  $\pm 30^\circ$ , deux hypothèses sont possibles :

- soit ces résultats sont corrects et impliquent que pendant le procédé d'injection, les fibres ne s'orientent pas dans la direction d'écoulement, mais sont déviées de  $\pm 30^\circ$  ;
- soit ces résultats résultent d'une erreur expérimentale systématique, liée à la coupe orthogonale.

La première hypothèse est rapidement exclue d'après les multiples images prises au microscope optique, en coupes parallèle au plan d'injection (Figure 1.21).

La deuxième hypothèse est en revanche plus plausible, car comme la plupart des fibres sont orientées dans la direction d'injection, quand on coupe perpendiculairement à cette direction, les fibres vont apparaître comme des cercles et non pas comme des ellipses. Si une fibre apparaît comme un cercle sur le plan de coupe, son rapport de forme  $b/a$  doit être égal à 1 et l'angle  $\phi$  dans le repère d'analyse doit être égal à  $0^\circ$ , c'est pourquoi l'angle  $\theta = \arccos(b/a) = 0^\circ$  (par rapport au plan de coupe) et par transformation dans le repère de référence (Eq.1.36),  $\theta' = 90^\circ$  et  $\phi' = \theta = 0^\circ$ . En revanche, si ce rapport est modifié (par la présence de poussière, d'éclat de verre ou des bords irréguliers des ellipses), la valeur de  $\theta$  est modifiée. Pour évaluer la sensibilité de l'angle  $\theta$  au rapport  $b/a$ , on peut noter que si ce rapport de forme devient égal à  $b/a = 0.866$  (ce qui correspond à une erreur de mesure de 6% sur le diamètre) et que  $\phi$  reste égal à  $0^\circ$ , l'angle  $\theta$  devient égal à  $\pm 30^\circ$  et par conséquent,  $\phi' = \theta = \pm 30^\circ$  d'après l'équation 1.36.



**Figure 1.21 :** orientation des fibres dans le plan d’injection (1,2). Image prise au MEB (a) et distribution de probabilité de l’angle  $\phi'$  (b) pour une plaque de 1 mm d’épaisseur du grade 1002

On constate donc qu’une petite variation des dimensions entraîne de grandes déviations des résultats. La même erreur de mesure sur les dimensions d’une ellipse va engendrer, en revanche, une variation plus faible de l’angle  $\theta$  : pour une fibre coupée à  $45^\circ$  par exemple, l’erreur engendrée est environ de  $\pm 5^\circ$ .

Cette observation est confortée par le fait qu’au cœur des plaques de 3 mm, la répartition des fibres dans la direction transverse est correctement mesurée expérimentalement : on vérifie donc que seules les fibres représentées par des cercles posent problème.

Afin d’éliminer ce problème d’erreur expérimentale et d’obtenir une distribution non aberrante en fonction de l’angle  $\phi'$ , une alternative consiste à opter pour une coupe inclinée sur laquelle la majorité des fibres apparaîtraient comme des ellipses. Le choix de l’angle de coupe doit être réfléchi, afin de réduire les erreurs et de garder un protocole expérimental facilement applicable.

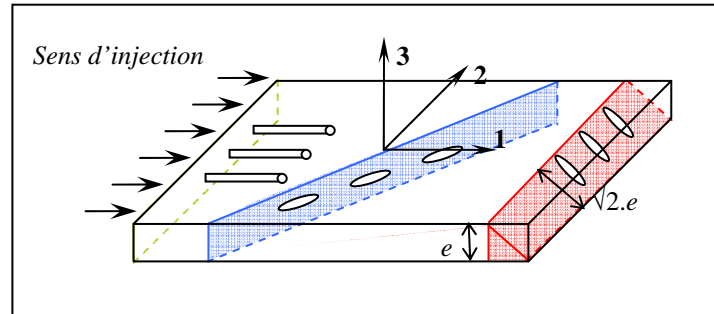
### 3.3 Mise au point d’une nouvelle méthode par coupe inclinée

Dans le cas de fibres continues, qui ont tendance à être fortement alignées, de nombreux auteurs [Yurgatis, 1987 ; Stecenko et Piggott, 1997] suggèrent de considérer un plan de coupe faiblement incliné par rapport à la direction préférentielle des fibres : la méthode de Yurgatis [1987], notamment, permet de déterminer l’orientation de fibres continues dans un composite par l’analyse de sections polies coupées à  $5^\circ$ . Les très grandes ellipses obtenues dans ce cas permettent une estimation plus précise de l’orientation, notamment pour l’angle  $\theta$ . Mais cette technique n’est pas pratique dans notre

cas, puisqu'on veut étudier l'évolution de la distribution d'orientation dans l'épaisseur de la plaque : cela nécessiterait de faire plusieurs coupes dans l'épaisseur ou pour observer une plaque de 3 mm en une seule fois, d'analyser un échantillon d'environ 35 mm de large !

Dans le cas de fibres courtes et en particulier pour les pièces injectées, sachant que la plupart des fibres sont orientées dans le sens d'écoulement ou dans la direction transverse, la précision sur les données d'orientation est améliorée quand le plan de coupe est réalisé à un angle  $\beta$  tel que la majorité des fibres, de section circulaire, apparaissent comme des ellipses : ceci est valable pourvu que le plan de coupe ne soit orthogonal à aucune de ces deux directions préférentielles, c'est-à-dire ni orthogonal à la direction 1 (plan 2,3) ni à la direction 2 (plan 1,3). Plusieurs auteurs ont ainsi obtenu une meilleure résolution sur les angles  $\theta'$  et  $\phi'$  par une coupe préférentielle, typiquement pour des angles compris entre  $30^\circ \leq \beta \leq 80^\circ$  [Hine et al., 1993] par rapport à la direction 3.

Etant donnée la façon dont les fibres sont réparties en injection et comme on veut observer la distribution des fibres dans l'épaisseur, nous avons choisi un angle de  $45^\circ$ , sachant que l'erreur est minimisée pour des fibres orientées dans la direction de l'écoulement, c'est-à-dire pour la majorité des fibres. Mais deux possibilités se présentent pour la coupe à  $45^\circ$  : on peut soit considérer le plan de coupe ayant pour normale  $(1,-1,0)$  (plan de gauche sur la figure 1.22), soit le plan de coupe ayant pour normale  $(1,0,1)$  (plan de droite sur la figure 1.22).



**Figure 1.22** : plans de coupe à  $45^\circ$  de normale  $(1,-1,0)$  (plan en bleu) et  $(1,0,1)$  (plan en rose)

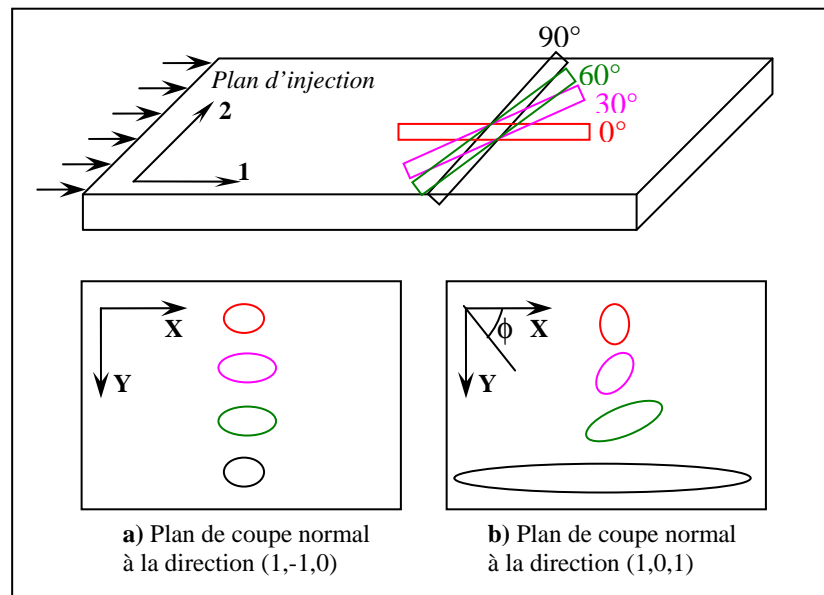
En pratique, la première coupe est plus facile à réaliser que celle dans l'épaisseur, puisqu'on a des plaques fines de 1 mm et 3 mm ; cependant, il est important de remarquer que bien que toutes deux engendrent la formation de formes elliptiques, elles ne sont pas équivalentes et la coupe dans l'épaisseur s'avère en fait plus avantageuse. Nous allons expliquer en détail, dans le paragraphe qui suit, les points qui différencient ces deux coupes.

### a) Avantages et principe de la coupe à 45° dans l'épaisseur

Afin de mettre en évidence l'intérêt de la coupe dans l'épaisseur par rapport à l'autre coupe de normale (1,-1,0), la figure 1.23 montre comment différentes fibres orientées dans le plan d'injection apparaissent sur ces deux plans :

- quand le plan est normal à la direction (1,-1,0), on constate que toutes les formes elliptiques correspondant aux différentes fibres ont le même angle  $\phi$  dans le repère d'analyse ; seules leurs dimensions varient, c'est-à-dire seules les valeurs de  $\theta$  changent d'une fibre à l'autre (Figure 1.23-a). On a montré précédemment (Paragraphe 3.2-d) que l'angle  $\theta$  est particulièrement sensible au rapport des dimensions de l'ellipse : par conséquent, des erreurs sont facilement induites sur les données d'orientation si leurs mesures ne se basent que sur les dimensions de l'ellipse ;
- par contre, quand la coupe est réalisée dans l'épaisseur (Figure 1.23-b), non seulement les dimensions des ellipses, mais aussi leur angle  $\phi$ , varient. Le système d'analyse d'images est très précis dans la détermination de cet angle : il en résulte que les données d'orientation sont beaucoup plus fiables.

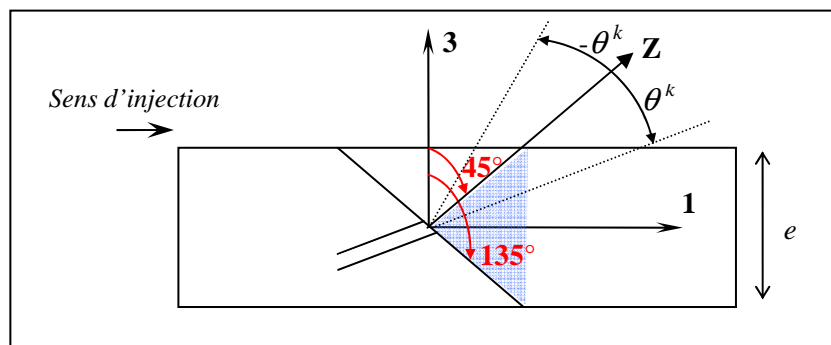
On voit donc ici un premier avantage primordial de la coupe dans l'épaisseur, qui est le gain en précision.



**Figure 1.23** : intersections de différentes fibres avec les deux plans de coupe à 45°

Par ailleurs, lorsque la coupe est normale à la direction (1,0,1), on peut noter que le plan de coupe est plus large ( $\sqrt{2}e$ ) que l'épaisseur  $e$  de la pièce (Figure 1.22) : ceci est un deuxième avantage quand on étudie l'évolution de l'orientation en fonction de l'épaisseur, car à intervalle égal entre deux couches, on aura plus de précision dans la mesure.

Enfin, il y a un dernier avantage (et pas des moindres) de la coupe dans l'épaisseur qui mérite d'être souligné. D'après les résultats obtenus pour  $\theta'$  par coupe orthogonale (Paragraphe 3.2), qui sont d'ailleurs en accord avec la littérature [Karger-Koicis, 1989 ; Bailey et Rzepka, 1991], on sait que la plupart des fibres sont orientées dans le plan d'injection et d'après les figures 1.18 à 1.20 (a), on peut considérer que toutes les fibres sont contenues entre deux plans orientés à  $\pm 45^\circ$  autour du plan d'injection : cela correspond à des valeurs de  $\theta'$  comprises entre  $45^\circ$  et  $135^\circ$ . Cette information est très utile, car elle va constituer un critère simple pour la détermination du signe de  $\theta$  dans le repère d'analyse (X,Y,Z). En effet, lors d'une coupe à  $45^\circ$  dans l'épaisseur, une fibre  $k$  a deux orientations possibles :  $(\theta^k, \phi^k)$  et  $(-\theta^k, \phi^k)$ , comme indiqués sur la figure 1.24, ce qui correspond à deux valeurs possibles de  $\theta'^k$  dans le repère de référence. Mais une seule de ces valeurs satisfait la condition  $\theta'^k \in [45^\circ, 135^\circ]$ , donc l'indétermination du signe de  $\theta^k$  est levée sans avoir à suivre le sens de fuite de la fibre dans la matrice.



**Figure 1.24** : cône d'orientation dans le cas des matériaux injectés

Cette dernière remarque est importante, car elle implique que la mesure tridimensionnelle de l'orientation peut se faire à partir d'une seule image: on n'a plus besoin d'appliquer les deux niveaux de seuillage! Avec l'autre type de coupe à  $45^\circ$ , par contre, le sens de fuite de la fibre doit être suivi, car il n'y a pas de condition quant à l'orientation des fibres dans le plan (1,2). On constate donc un autre intérêt de la coupe dans l'épaisseur, qui est le gain de temps.

Il est important de souligner que cette technique est applicable dans le cas particulier des pièces injectées, puisqu'une distribution des fibres symétrique et autour du plan d'injection est induite par le procédé. Pour une distribution aléatoire, en revanche, la méthode ne sera pas valable. Malgré tout, les industriels participant à l'étude ont étudié l'opportunité de déposer un brevet sur le principe de cette découpe pour la détermination de l'orientation dans les pièces injectées.

## Récapitulatif

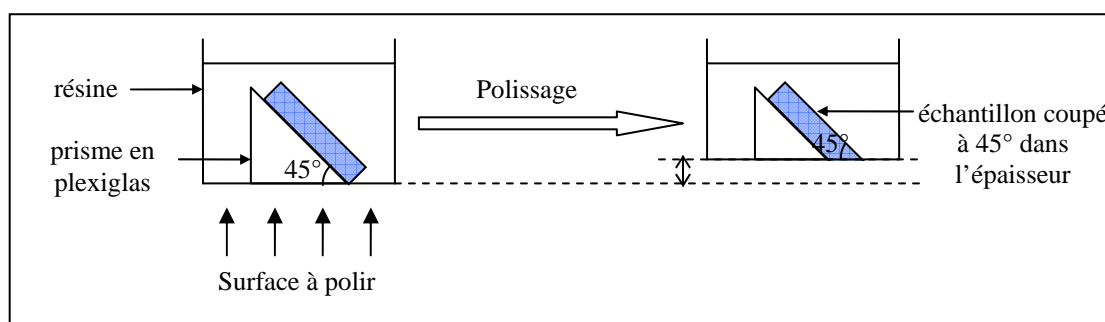
L'analyse en 2D d'une coupe préférentielle, inclinée à 45° dans l'épaisseur, permet donc de fournir l'état d'orientation tridimensionnel dans le cas de plaques injectées. Cette méthode s'avère beaucoup plus rapide que les autres approches basées sur l'analyse de plans de coupe, car non seulement une seule surface de l'échantillon est polie, mais en plus chaque image prise au MEB ne nécessite d'être analysée qu'une fois.

Cette technique présente en plus l'avantage d'être particulièrement précise, d'abord parce que les données d'orientation font intervenir la mesure de l'angle  $\phi$ , qui est déterminé de manière très fiable par le système d'analyse d'images ; ensuite parce que l'erreur expérimentale induite pour les fibres parallèles au sens d'écoulement (la majorité des fibres) est minimisée, puisque des formes elliptiques (et non plus des cercles) sont analysées.

Enfin, on peut aussi noter que l'évolution de l'orientation en fonction de l'épaisseur est plus finement décrite, puisque l'épaisseur est augmentée d'un rapport  $\sqrt{2}$ .

### b) Protocole expérimental

La coupe dans l'épaisseur est délicate, puisque nos plaques injectées sont fines (1 mm et 3 mm). Nous avons alors mis au point un montage permettant une manipulation plus aisée de la coupe à 45° (Figure 1.25) : des prismes sont précisément usinés à 45° dans une plaque en plexiglas et nos échantillons de 1 mm ou 3 mm, découpés au centre de la plaque comme sur la figure 1.10, y sont collés. L'ensemble est enrobé à froid dans une résine de type époxy et est poli, après durcissement, selon le protocole défini dans le tableau 1.4 : la surface de l'échantillon est alors inclinée selon un angle de 45° dans l'épaisseur.



**Figure 1.25** : montage de l'échantillon pour la coupe à 45° dans l'épaisseur

Dans un souci de gain de temps, les échantillons sont polis par six : ainsi le temps total d'analyse par échantillon (dans le cas où 40 images sont analysées par échantillon) passe d'environ 4h, quand un échantillon est traité à la fois, à 2h50 quand on en traite 6 à la fois (Tableau 1.5).



Dans le cas de la coupe orthogonale, les images MEB sont analysées deux fois (donc le temps d'analyse est multiplié par 2), mais il n'y a pas de montage sur prisme en plexiglas (le temps d'enrobage est de 15min) : il en résulte un temps d'analyse de 4h15min par échantillon, si ils sont traités par 6. On constate donc que cette méthode est plus de 1.5 fois plus longue que par la coupe à 45° dans l'épaisseur.

	Temps [min]	
	1 échantillon 40 photos / échantillon	6 échantillons 40 photos / échantillon
Montage sur prisme + enrobage	30	45
Polissage	60	60
Métallisation + images au MEB	70	370
Analyse des images	90	540
Temps total [min]	250	1015
Temps / échantillon [min]	250	169
<b>Temps / échantillon [heures]</b>	<b>4h10min</b>	<b>2h49min</b>

**Tableau 1.5** : temps total nécessaire pour l'analyse d'un échantillon, dans le cas de la coupe inclinée à 45° dans l'épaisseur

Par ailleurs, un programme très simple a été écrit sous *Matlab*®, afin d'automatiser la détermination d'orientation de chaque fibre : à partir des caractéristiques  $a^k$ ,  $b^k$ ,  $\phi^k$  de chaque ellipse, mesurées à l'aide du logiciel d'analyse d'images, deux valeurs  $\theta_1^k$  et  $\theta_2^k$  sont calculées. Après transformation dans le repère de référence (Equation 1.36), deux valeurs  $\theta_1'^k$  et  $\theta_2'^k$  sont obtenues : le programme identifie quelle valeur appartient à l'intervalle  $[45^\circ, 135^\circ]$  et remonte à la valeur de  $\theta^k$  dans le repère d'analyse. Enfin, à partir de  $\theta^k$  et  $\phi^k$  et via l'Eq. 1.36, l'angle  $\phi'^k$  est calculé dans le repère de référence ; ainsi l'orientation de chaque fibre est rapidement déterminée.

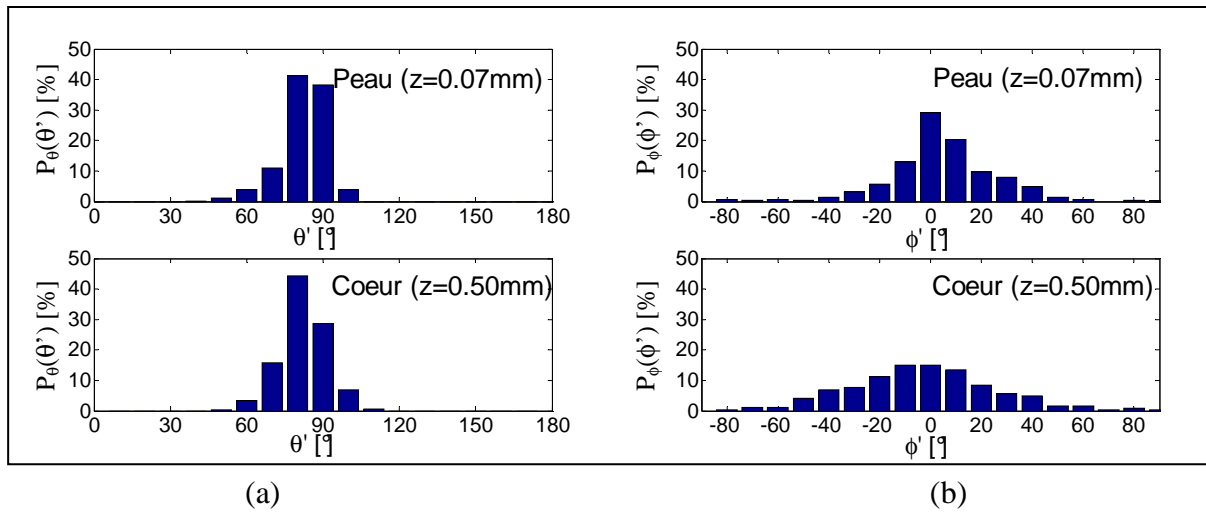
### c) Résultats

De nouvelles mesures d'orientation sont réalisées sur nos deux grades de matériaux et pour les deux épaisseurs considérées pendant l'injection. Les résultats sont montrés ci-dessous.

#### IXEF 1002 - plaque de 1 mm

En pratique, l'épaisseur a été divisée en sept couches. Une surface d'environ 0.25x1 mm<sup>2</sup> (ce qui correspond à environ 250 fibres) est analysée par couche. Les distributions de probabilité d'orientation mesurées sont montrées pour les couches de peau et de cœur, sur la figure 1.26.

Il apparaît clairement que la distribution en fonction de l'angle  $\phi'$  est centrée sur la valeur 0° et que les deux pics obtenus à  $\pm 30^\circ$  lors de la coupe orthogonale ont disparu.



**Figure 1.26 :** fonctions de distribution de probabilité d'orientation obtenues par coupe à 45° dans l'épaisseur, dans le cas d'un polyarylamide renforcé de 30% de fibres de verre et pour une plaque injectée de 1 mm d'épaisseur. Distributions en fonction de l'angle  $\theta'$  (a) et en fonction de  $\phi'$  (b)

On en déduit qu'une erreur expérimentale est bien induite par la coupe orthogonale, pour les fibres orientées dans le sens de l'écoulement et on remarque que la coupe à 45° s'avère très efficace pour réduire cette erreur. Les nouvelles mesures confirment également le caractère majoritairement planaire de la distribution (Figure 1.26-a), puisque la plupart des valeurs de  $\theta'$  valent 80°- 90°.

Le tenseur d'orientation d'ordre 2 mesuré dans toute l'épaisseur est aussi beaucoup plus réaliste et vaut :

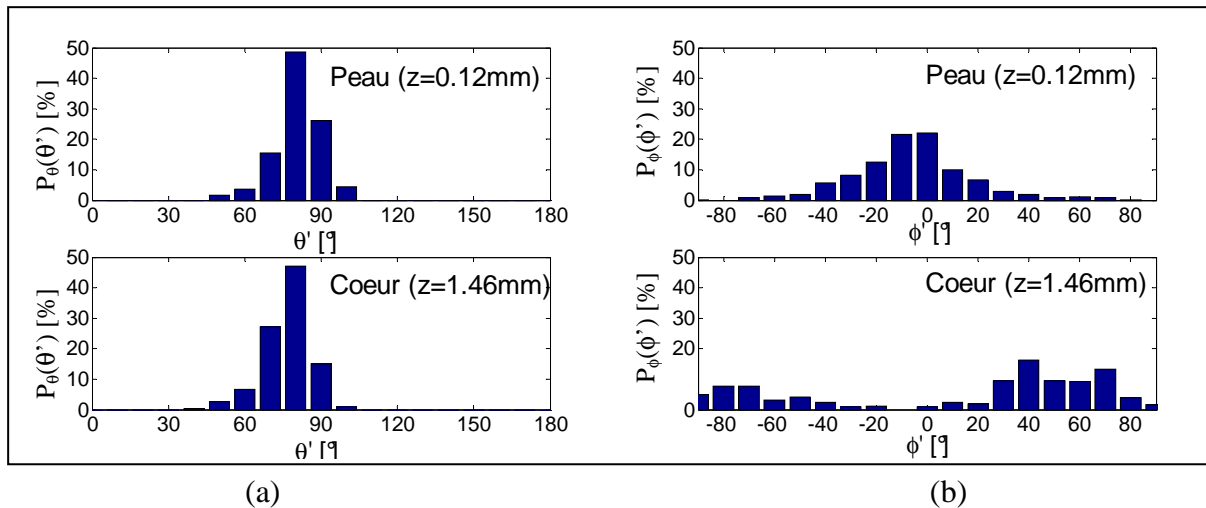
$$[a_{ij}] = \begin{bmatrix} 0.79 & 0.01 & 0.05 \\ 0.01 & 0.18 & 6 \times 10^{-3} \\ 0.05 & 6 \times 10^{-3} & 0.03 \end{bmatrix}$$

La composante  $a_{11}$  est nettement supérieure aux deux autres composantes diagonales et  $a_{33}$  reste très faible (mais non nulle).

### IXEF 1002 - plaque de 3 mm

Pour les plaques de 3 mm, des surfaces de 0.35x0.93 mm<sup>2</sup> sont analysées pour chacune des 12 couches : cela correspond à environ 280 fibres par couche. Les résultats en peau et au cœur sont illustrés sur la figure 1.27.

Là encore on constate que la distribution aberrante obtenue par coupe orthogonale n'apparaît plus, puisque les valeurs de  $\phi'$  sont majoritairement égales à 0° en peau et tendent vers  $\pm 90^\circ$  au cœur.



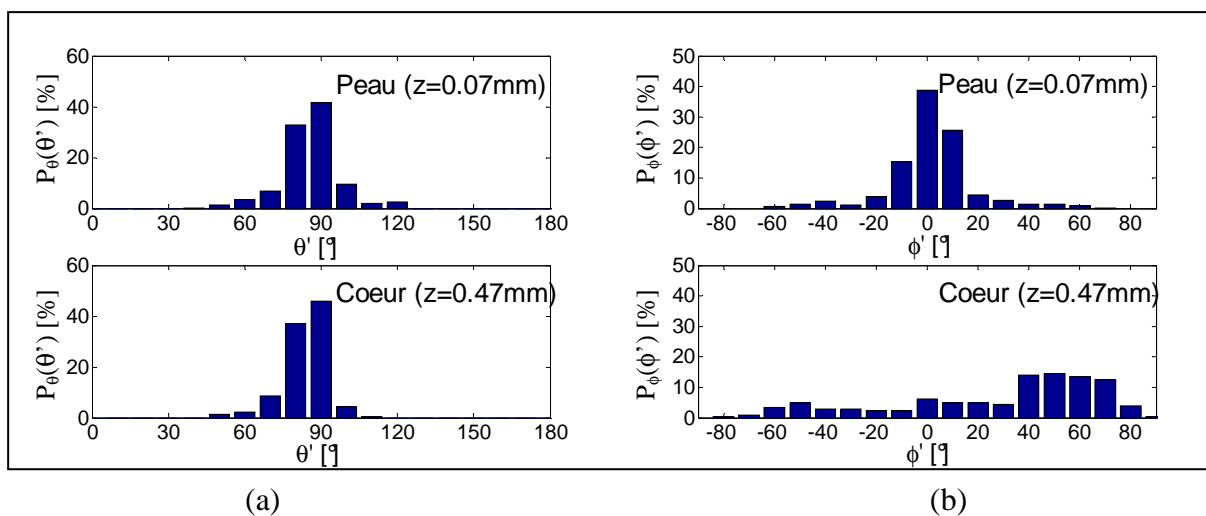
**Figure 1.27 :** fonctions de distribution de probabilité d'orientation obtenues par coupe à  $45^\circ$  dans l'épaisseur, dans le cas d'un polyarylamide renforcé de 30% de fibres de verre et pour une plaque injectée de 3 mm d'épaisseur. Distributions en fonction de l'angle  $\theta'$  (a) et en fonction de  $\phi'$  (b)

Le tenseur d'orientation correspondant possède une valeur de  $a_{11}$  logiquement inférieure à celle obtenue pour les plaques de 1 mm et on a dans toute l'épaisseur :

$$[a_{ij}] = \begin{bmatrix} 0.64 & 6 \times 10^{-3} & 0.04 \\ 6 \times 10^{-3} & 0.33 & 3 \times 10^{-3} \\ 0.04 & 3 \times 10^{-3} & 0.03 \end{bmatrix}$$

### IXEF 1022 - plaque de 1 mm

Pour le grade 1022, la nature des résultats est similaire, comme le montre la figure 1.28.



**Figure 1.28 :** fonctions de distribution de probabilité d'orientation obtenues par coupe à  $45^\circ$  dans l'épaisseur, dans le cas d'un polyarylamide renforcé de 50% de fibres de verre et pour une plaque injectée de 1 mm d'épaisseur. Distributions en fonction de l'angle  $\theta'$  (a) et en fonction de  $\phi'$  (b)

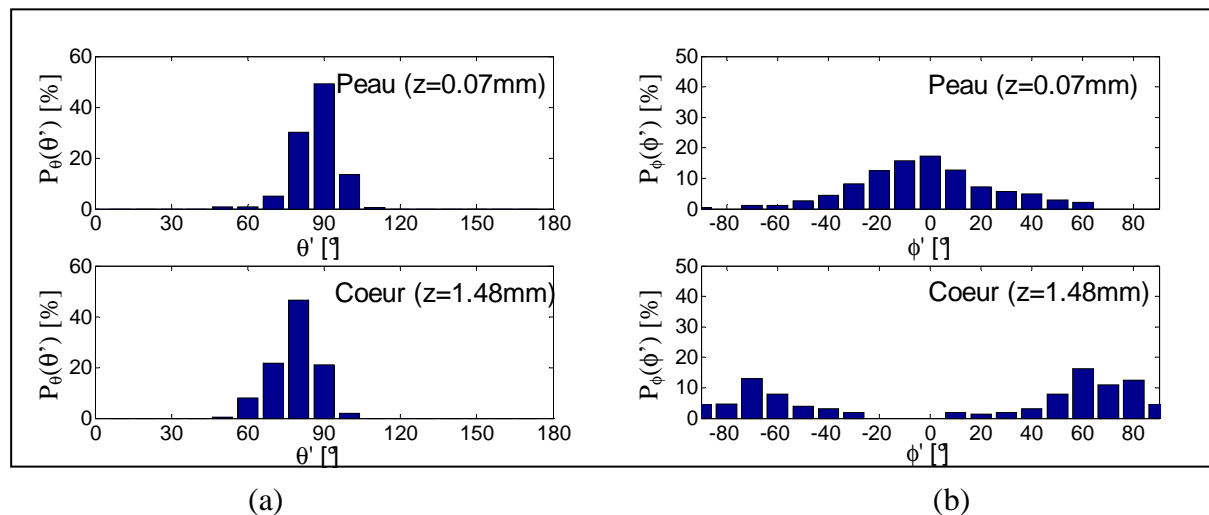
La surface analysée par couche est de  $0.25 \times 0.66 \text{ mm}^2$  et comprend en moyenne 300 fibres ; au total, sept couches divisent l'épaisseur.

L'état d'orientation est très similaire à celui du grade 1002, pour la même épaisseur de plaque, sauf que les fibres sont en moyenne un peu moins orientées dans le sens d'écoulement, comme le montre la composante  $a_{11}$  (valeur moyenne dans l'épaisseur) du tenseur d'ordre 2 calculé dans l'épaisseur de la plaque :

$$[a_{ij}] = \begin{bmatrix} 0.76 & 0.07 & 10^{-3} \\ 0.07 & 0.22 & -8 \times 10^{-4} \\ 10^{-3} & -8 \times 10^{-4} & 0.02 \end{bmatrix}$$

### IXEF 1022 - plaque de 3 mm

La surface analysée par couche est de  $0.25 \times 0.93 \text{ mm}^2$  et comprend en moyenne 430 fibres ; 17 couches sont analysées au travers de l'épaisseur.



**Figure 1.29** : fonctions de distribution de probabilité d'orientation obtenues par coupe à  $45^\circ$  dans l'épaisseur, dans le cas d'un polyarylamide renforcé de 50% de fibres de verre et pour une plaque injectée de 3 mm d'épaisseur. Distributions en fonction de l'angle  $\theta'$  (a) et en fonction de  $\phi'$  (b)

Les résultats de la figure 1.29, ainsi que le tenseur d'orientation d'ordre 2 mesuré dans toute l'épaisseur pour le grade 1022 :

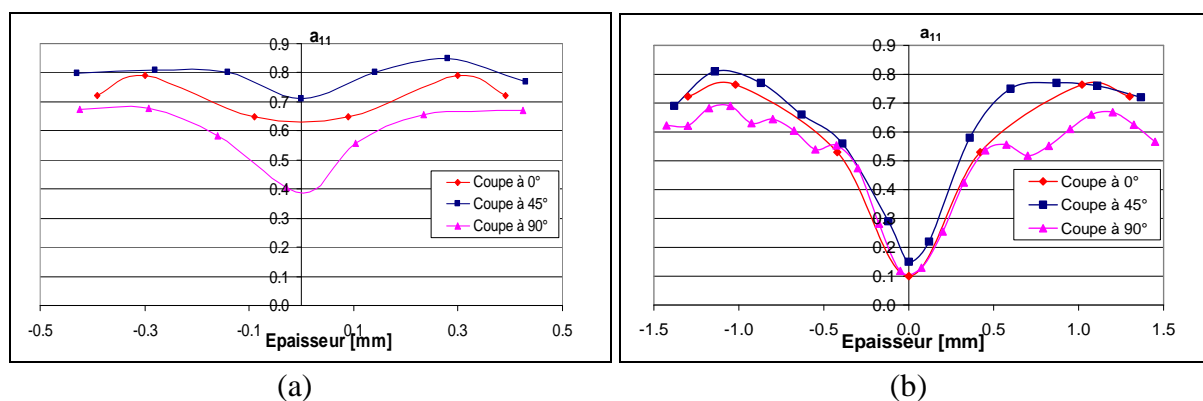
$$[a_{ij}] = \begin{bmatrix} 0.64 & -0.04 & 0.02 \\ -0.04 & 0.33 & -0.01 \\ 0.02 & -0.01 & 0.03 \end{bmatrix}$$

montrent que la fraction volumique des fibres intervient peu sur la distribution d'orientation (comparaison avec les plaques de 3 mm du grade 1002).

## Récapitulatif

La technique de coupe inclinée dans l'épaisseur s'avère donc très efficace pour réduire l'erreur faite sur la mesure expérimentale des angles. Les données d'orientation mesurées sont cohérentes, puisqu'il en ressort une distribution majoritairement dans le plan d'injection (la plupart des valeurs de  $\theta'$  valent  $90^\circ$ ), avec une orientation préférentielle des fibres selon le sens d'écoulement (valeurs de  $\phi'$  essentiellement égales à  $0^\circ$ ). Ces résultats sont d'ailleurs en accord avec d'autres mesures faites, à différentes épaisseurs, sur des plans de coupe parallèles au plan d'injection.

Afin d'évaluer les différentes approches, la composante  $a_{11}$  du tenseur d'orientation est déterminée expérimentalement par coupe orthogonale ( $\alpha = 90^\circ$ ), par coupe à  $45^\circ$  dans l'épaisseur ( $\alpha = 45^\circ$ ) et par coupes parallèles au plan d'injection ( $\alpha = 0^\circ$ ). Les résultats obtenus dans les trois cas et pour le grade 1002 sont représentés, en fonction de l'épaisseur de la plaque, sur la figure 1.30. On précise que la valeur 0 de l'épaisseur correspond au coeur de la plaque.



**Figure 1.30 :** variation de la composante  $a_{11}$  en fonction de l'épaisseur mesurée par trois plans de coupe différents, dans le cas d'un polyarylamide renforcé de 30% de fibres de verre. Plaque de 1 mm (a) et de 3 mm (b)

On constate que la coupe orthogonale sous-estime les valeurs de  $a_{11}$  dans toute l'épaisseur pour les deux plaques (de 1 mm et 3 mm) ; en revanche, les résultats obtenus par les coupes parallèles et à  $45^\circ$  sont très proches. Or les mesures par coupes parallèles au plan d'injection sont particulièrement fiables, puisque de grandes ellipses sont analysées. On en déduit que la coupe à  $45^\circ$  dans l'épaisseur améliore la précision des données (par rapport à la coupe orthogonale), en particulier pour les fibres orientées dans le sens d'écoulement.

Les tenseurs d'ordre supérieur sont facilement calculés par cette méthode. Les tenseurs d'ordre 4, en particulier, sont nécessaires en modélisation pour évaluer les propriétés thermo-mécaniques. Pour cette raison, les 13 composantes indépendantes (Eq.1.20) du tenseur d'ordre 4 ont été mesurées expérimentalement pour les deux grades 1002 et 1022, ainsi que pour les 2 épaisseurs considérées.

Leurs valeurs sont regroupées dans le tableau 1.6 et serviront de référence dans la partie 2 du document.

	1002-1mm	1002-3mm	1022-1mm	1022-3mm
$a_{1111}$	0.694	0.517	0.666	0.523
$a_{1122}$	0.080	0.102	0.076	0.095
$a_{1133}$	0.019	0.017	0.015	0.017
$a_{1112}$	0.018	0.001	0.039	-0.029
$a_{1123}$	0.004	-0.001	0.000	-0.005
$a_{1131}$	0.042	0.032	0.001	0.014
$a_{2222}$	0.094	0.218	0.134	0.225
$a_{2212}$	-0.003	0.006	0.028	-0.009
$a_{2223}$	0.002	-0.001	-0.001	-0.006
$a_{2231}$	0.006	0.008	0.000	0.008
$a_{3312}$	0.001	0.000	0.000	-0.001
$a_{3323}$	0.000	0.000	0.000	-0.001
$a_{3313}$	0.005	0.004	0.001	0.003

**Tableau 1.6** : composantes indépendantes du tenseur d'ordre 4 pour les grades 1002 et 1022 injectés dans des plaques de 1 mm et 3 mm d'épaisseur

### 3.4 Synthèse sur la détermination de l'orientation spatiale des fibres

L'observation au MEB d'une seule coupe par laquelle il est possible de suivre le sens de fuite de la fibre dans la matrice a été présentée. Elle permet la caractérisation tridimensionnelle de l'orientation des fibres, à partir de l'analyse d'un unique plan de coupe : l'ambiguïté d'orientation est levée et une description complète peut être mesurée. Cette méthode, applicable à tout composite renforcé de fibres courtes, a été automatisée, afin d'analyser de grandes surfaces en des temps relativement courts.

Dans le cas des polymères chargés et injectés, une distribution particulière des fibres est induite par l'écoulement et il résulte que la majorité des fibres sont orientées dans ou autour du plan d'injection : en fait, elles peuvent être contenues entre deux plans orientés à  $\pm 45^\circ$  du plan d'injection. Par conséquent, lors d'une coupe orthogonale, la plupart des fibres apparaissent comme des cercles et les erreurs de mesure engendrent une distribution aberrante. En revanche, si la coupe est inclinée dans l'épaisseur, le problème ne se pose plus car la majorité des fibres prennent une forme elliptique.

Nous avons alors mis au point une nouvelle technique expérimentale, encore plus simple que la précédente, qui consiste simplement à analyser (en 2D) un plan coupé à  $45^\circ$  dans l'épaisseur du matériau. Dans ces conditions, un critère simple s'applique pour déterminer le signe de l'angle  $\theta$ , sans avoir à suivre la fibre dans la matrice ; par conséquent les mesures sont beaucoup plus rapides (plus de 1.5 fois).

Cette méthode s'est avérée très efficace pour déterminer la distribution d'orientation des fibres dans plusieurs polyarylamides renforcés de fibres de verre. Elle permet notamment de réduire l'incertitude sur la mesure des angles, quand les fibres sont orientées dans le sens d'injection. Il est important de préciser que quelle que soit la méthode utilisée parmi les deux citées, la fiabilité des résultats est très fortement dépendante de la qualité de préparation de l'état de surface des échantillons : c'est la raison pour laquelle nous avons mis au point un protocole de polissage adapté à nos matériaux.

La méthode de coupe à 45° a elle aussi été automatisée pour manipuler de plus grandes surfaces. De cette manière, des tenseurs et des fonctions de distribution d'orientation peuvent être mesurés localement ou en moyenne dans le volume du matériau. Ces outils de caractérisation sont indispensables pour prendre en compte l'effet de l'orientation des fibres dans les modèles micro-mécaniques et on montrera dans la partie 2 comment ils sont intégrés dans les équations de mécanique.

## **4. PREDICTION DE L'ORIENTATION DES FIBRES**

La prédiction de l'orientation des fibres est d'un intérêt évident, puisqu'elle joue un rôle important sur les propriétés physiques et thermo-mécaniques des composites. Durant le procédé de mise en forme, l'orientation varie énormément et de nombreux travaux ont été menés pour calculer le mouvement des fibres. Jeffery [1922] est à la base des recherches, puisqu'il a dérivé l'équation de mouvement d'une particule ellipsoïdale immergée dans un fluide Newtonien. Folgar et Tucker [1984] ont ajouté un terme de diffusion à l'équation de Jeffery, afin de prendre en compte l'interaction entre fibres. Advani et Tucker [1987], qui ont introduit la notion de tenseurs d'orientation, ont développé des équations décrivant l'évolution des tenseurs d'ordre 2 et 4 en fonction du temps.

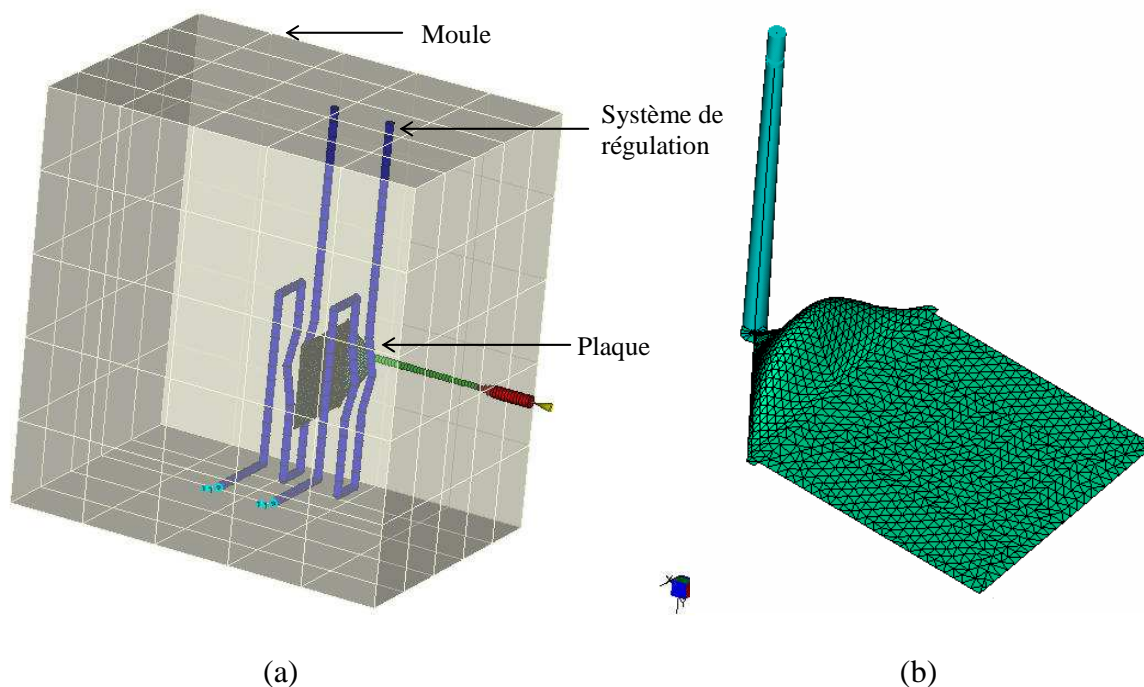
Dans le cas de l'injection, de nombreux auteurs et en particulier Vincent et al., ainsi que Han et Im [Vincent et al., 1988 ; Vincent et Agassant, 1989 ; Han et Im, 2002] ont bien développé les calculs d'orientation.

### **Logiciel Moldflow®**

Nous utilisons dans cette partie de l'étude le logiciel commercial Moldflow® pour simuler le procédé d'injection et prédire l'état d'orientation des fibres ; les calculs d'orientation sont basés sur la théorie de Folgar et Tucker et les résultats sont caractérisés par des tenseurs d'orientation d'ordre 2.

Les conditions réelles d'injection (temps et pression) sont considérées dans la simulation. La construction de la maquette intégrant la plaque, la buse et le seuil d'injection, ainsi que le système d'alimentation, a été réalisée au cours de la thèse de J.F. Luyé [1999]. Le modèle numérique de la

plaque, du moule et du système de refroidissement, ainsi que le maillage sont présentés sur la figure 1.31.



**Figure 1.31** : modèle utilisé dans le logiciel Moldflow® (a) et maillage de la plaque (b)

Les simulations ont été réalisées au laboratoire et chez LEGRAND avec la version MPI 4.1. La géométrie de la pièce ne justifie pas une modélisation en trois dimensions de l'écoulement ; aussi Moldflow® permet de travailler avec deux types de maillage :

- le maillage en fibre neutre,
- le maillage en fusion (ou double peau).

En pratique, les maillages en fibre neutre sont utilisés pour les pièces d'épaisseur constante, alors que le maillage en fusion est préféré pour les pièces complexes. Dans les deux cas, les éléments finis composant le maillage sont des triangles, ce qui permet de limiter les temps de calcul.

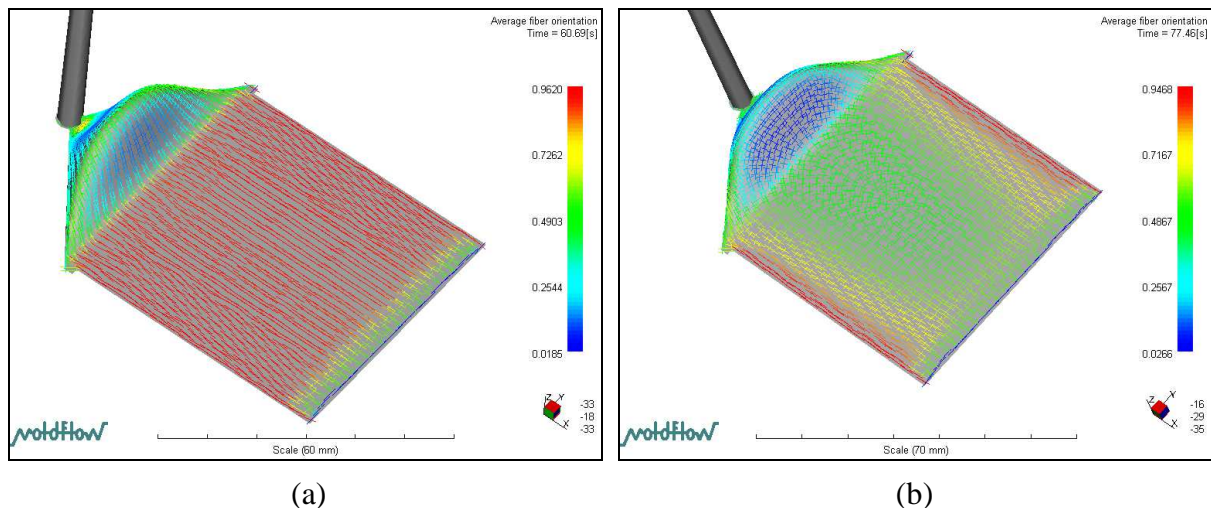
Nous avons testé les deux maillages, en collaboration avec LEGRAND, afin d'évaluer leur influence sur l'orientation : la configuration géométrique de notre plaque étant très simple, aucun écart significatif n'a été noté (Figure 1.33). Nous décidons alors de nous limiter au maillage en fibre neutre, plus simple à réaliser.

Nous avons aussi testé l'effet de la thermique du moule sur l'orientation et il s'avère qu'elle ne joue pas un rôle très important.



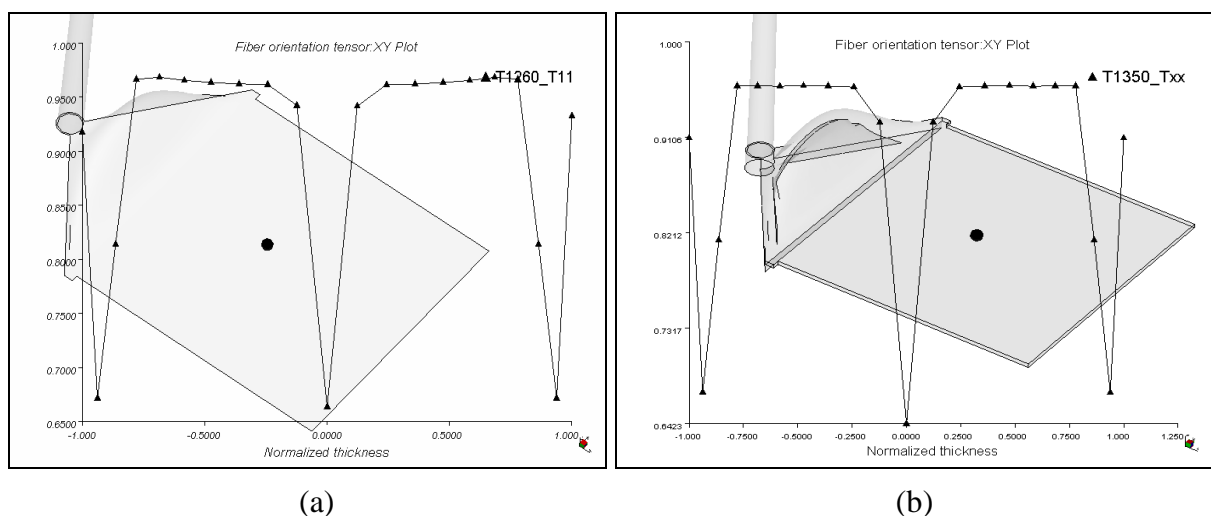
## Simulation numérique et prédiction de l'orientation

Afin d'avoir une idée générale sur la distribution des fibres prédite par Moldflow®, la figure 1.32 représente la répartition spatiale de la valeur moyenne de  $a_{11}$  (composante du tenseur d'orientation d'ordre 2) dans des plaques de 1 mm et 3 mm d'épaisseur : on constate que le logiciel prédit un matériau nettement plus orienté pour les plaques de 1 mm que les plaques de 3 mm ; ceci est en accord avec la réalité.



**Figure 1.32 :** répartition spatiale de la valeur moyenne de  $a_{11}$  pour une plaque de 1 mm d'épaisseur (a) et une plaque de 3 mm d'épaisseur (b)

Dans le cas des plaques de 1 mm, l'évolution de la composante  $a_{11}$  du tenseur d'orientation en fonction de l'épaisseur de la plaque est représentée sur la figure 1.33, avec une comparaison des résultats obtenus en fibre neutre et en fusion.

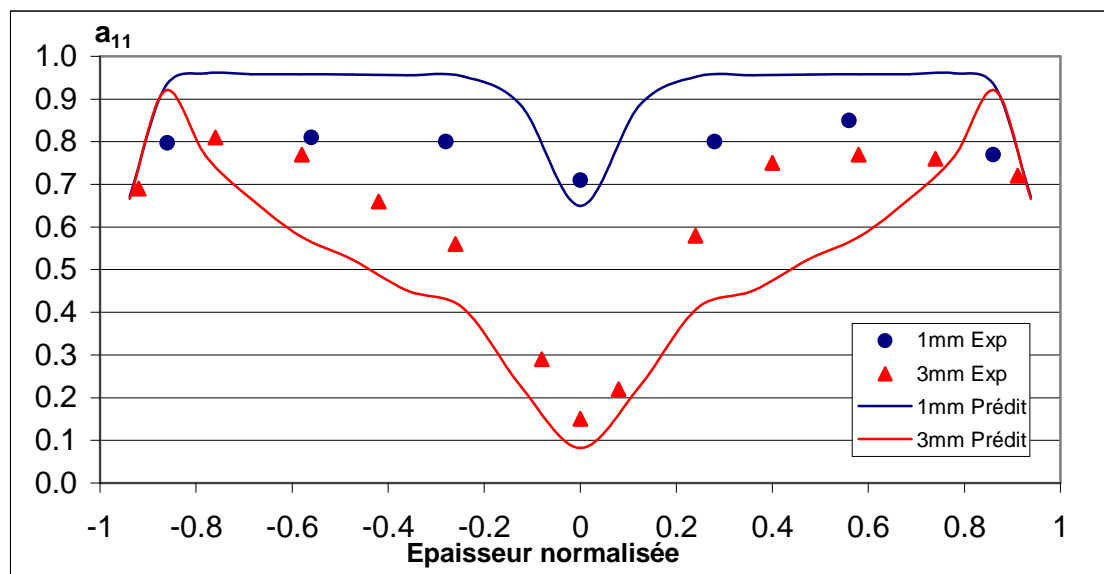


**Figure 1.33 :** prédiction de la composante  $a_{11}$  du tenseur d'orientation par un maillage en fibre neutre (a) et en fusion (b) dans le cas d'une plaque de 1 mm d'épaisseur

Il est clair que les deux maillages aboutissent à des résultats similaires, à savoir des fibres très orientées ( $a_{11} > 0.95$ ), sauf au cœur où  $a_{11}$  est proche de 0.65.

### Comparaison expérience/simulation : mise en évidence des écarts

Pour pouvoir comparer l'orientation simulée à l'orientation mesurée expérimentalement, on s'est placé au même endroit, c'est-à-dire au centre de la plaque (Figures 1.10 et pour les prédictions Figure 1.33). Il est alors possible de superposer les résultats en fonction de l'épaisseur. La figure 1.34 compare les valeurs de  $a_{11}$  mesurées (par coupe à 45° dans l'épaisseur) et simulées, pour les plaques de 1 mm et 3 mm. Pour faciliter la lecture du graphe, les épaisseurs ont été normalisées, de sorte qu'elles soient comprises entre -1 et 1 ; 0 correspondant au cœur.



**Figure 1.34** : comparaison entre les valeurs de  $a_{11}$  prédites et mesurées expérimentalement. Cas de plaques de 1 mm et 3 mm d'épaisseur

Pour les plaques de 1 mm, on constate que quantitativement, Moldflow® surestime la composante  $a_{11}$  dans toute l'épaisseur (écart supérieur à 20%), sauf dans la fine région du cœur ; qualitativement, la forme de la répartition prédite est très similaire à celle obtenue expérimentalement. Pour les plaques de 3mm, Moldflow® a au contraire tendance à sous-estimer les valeurs de  $a_{11}$ , sauf près des bords et l'écart maximum est supérieur à 30%.

Il est évident que l'orientation nécessite d'être correctement prédite, car les propriétés thermo-mécaniques et tous les calculs qui en découlent (tels que les déformées) en dépendent fortement. Sachant que nos mesures expérimentales par coupe à 45° dans l'épaisseur semblent relativement

fiables, le décalage entre les mesures d'orientation et les prédictions pourrait trouver son origine dans la simulation.

### **Discussion sur les origines possibles des écarts**

Plusieurs facteurs dans le code de calcul peuvent induire des erreurs sur les prédictions, comme :

- l'imprécision des données d'entrée, qui incluent les données du matériau et les paramètres des modèles ;
- la concentration et le rapport de forme des fibres, les conditions d'injection et la géométrie de la pièce, qui peuvent être différents de la réalité ;
- l'inadéquation de la théorie, qui comprend le modèle d'écoulement et le modèle d'orientation des fibres.

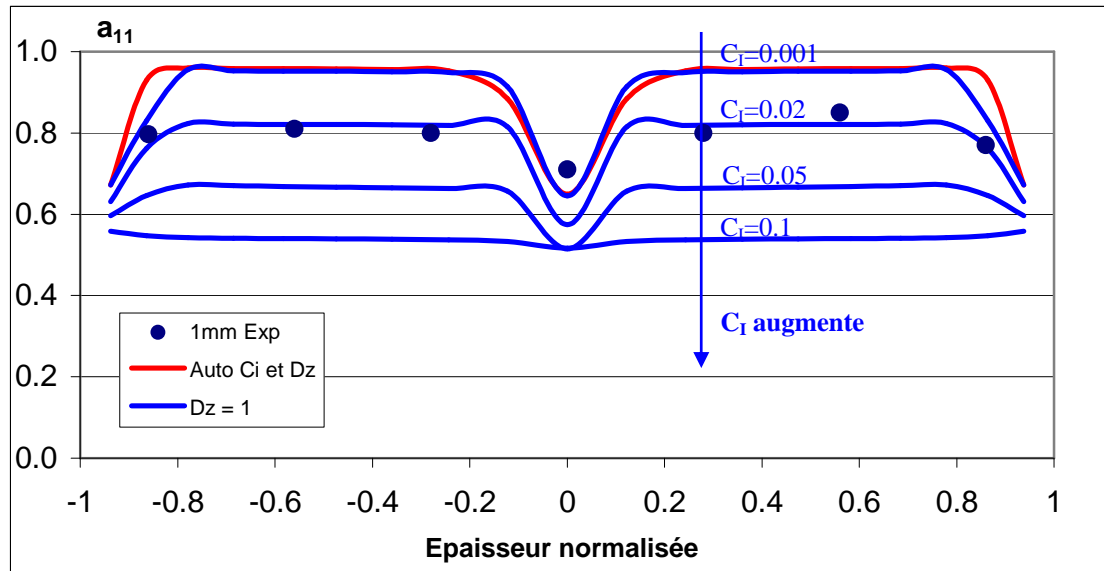
Concernant l'imprécision des données d'entrée mentionnée dans le premier point, les paramètres importants qui influencent l'orientation des fibres sont la température de solidification (qui affecte le développement de la gaine solidifiée) et la viscosité (qui affecte les gradients de vitesse). Cependant, il est difficile d'obtenir des valeurs expérimentales très précises et on se limite aux données caractérisées pour la simulation par Moldflow® et Solvay.

Pour les paramètres mentionnés dans le 2<sup>ème</sup> point, ils ont été vérifiés autant que possible par Solvay, Moldflow® et au laboratoire, afin d'obtenir des valeurs réalistes.

Enfin, concernant la théorie, Moldflow® utilise le modèle de Folgar et Tucker [1984] pour les calculs d'orientation des fibres. Or ce modèle présente quelques limites, comme l'existence de paramètres ajustables  $C_1$  et  $D_z$ , dont les valeurs exactes sont inconnues : le coefficient  $C_1$  correspond au coefficient d'interaction entre fibres et  $D_z$  contrôle la distribution d'orientation à travers l'épaisseur. Le logiciel propose alors deux options : soit le calcul automatique de ces paramètres par le code (option par défaut), soit l'affectation manuelle de valeurs à  $C_1$  et  $D_z$ . Il apparaît que des valeurs différentes de  $C_1$  et  $D_z$  engendrent des résultats d'orientation différents.

Pour évaluer l'influence de ces paramètres, on a procédé à de nouvelles simulations en collaboration avec Moldflow®, en faisant varier les valeurs de  $C_1$  et  $D_z$ . Les conditions des simulations antérieures sont conservées (maillage en fibre neutre, coefficient de transfert de chaleur moule-matière fixé à  $4000\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{C}^{-1}$ ) et la version MPI 5.0 est utilisée. Les prédictions obtenues pour les plaques de 1 mm sont comparées aux données expérimentales sur la figure 1.35.

La courbe rouge représente les résultats obtenus précédemment pour la plaque de 1 mm (Figure 1.34), avec des valeurs automatiquement calculées pour  $C_I$  et  $D_Z$  : dans ce cas, ces paramètres sont égaux à  $C_I = 0.001$  et  $D_Z = 0.75$  et les valeurs de  $a_{11}$  sont surestimées par rapport aux mesures expérimentales (représentées par les symboles).



**Figure 1.35 :** influence des paramètres ajustables  $C_I$  et  $D_Z$  sur les prédictions d'orientation d'une plaque de 1 mm d'épaisseur

Quand  $D_Z$  prend la valeur 1 (courbe bleue), les valeurs de  $a_{11}$  sont modifiées sur les bords, mais le niveau et le profil d'orientation restent le même. Quand on augmente la valeur de  $C_I$ , le niveau moyen d'orientation est fortement diminué et la structure cœur-peau tend à s'estomper complètement.

On constate qu'il est alors possible d'ajuster le niveau d'orientation aux données expérimentales, en jouant sur ces deux paramètres ; en particulier, une bonne description de l'orientation des fibres dans les plaques de 1 mm peut être obtenue en fixant  $C_I = 0.02$  et  $D_Z = 1$  (Figure 1.35).

Un deuxième problème est connu avec le modèle utilisé et repose sur le fait qu'une fibre atteint son état d'équilibre beaucoup plus vite que dans la réalité. En conséquence, le cœur des plaques est trop mince par rapport aux profils réels et ce fait est surtout visible pour les plaques de 1 mm. Pour pallier ce problème, Tucker a introduit un paramètre supplémentaire dans le modèle, appelé le facteur de réduction de déformation (SRF). Il est actuellement intégré dans la version de recherche de Moldflow®, mais les simulations faites jusque-là ne semblent pas encourageantes pour l'amélioration des prédictions.

## Synthèse

La simulation de l'injection avec le code de calcul Moldflow® permet de prédire l'orientation des fibres. Cependant, des écarts supérieurs à 30% par rapport aux mesures expérimentales sont parfois obtenus (plaques de 3 mm). On a montré qu'il était possible d'ajuster le niveau d'orientation au plus près des données mesurées en jouant sur deux paramètres,  $C_1$  et  $D_z$ , mais à ce stade, nous ne savons pas comment évoluent ces paramètres en fonction des milieux hétérogènes considérés, ni même en fonction de l'épaisseur des plaques injectées. Il est indispensable de mieux maîtriser l'influence de ces deux paramètres et d'une manière plus générale, il apparaît nécessaire que Moldflow® continue à améliorer son modèle de calcul de l'orientation. En effet, la distribution des fibres est un paramètre très important qui influence fortement les propriétés thermo-mécaniques du composite, celles-là mêmes qui gouvernent le comportement macroscopique de la pièce et les grandeurs mécaniques induites (déformations, contraintes, retraits, dimensions). On comprend donc la nécessité de disposer de données d'orientation réalistes.

Enfin, un deuxième point mérite d'être souligné : alors que par des mesures expérimentales, toute sorte de caractérisation de l'orientation peut être obtenue, Moldflow® et en général les codes de calcul simulant l'injection ne calculent les données d'orientation que sous forme de tenseurs d'ordre 2. Cette description de l'orientation est restrictive, dans le sens où elle ne pourra pas être intégrée dans tous les modèles d'homogénéisation ; certains en effet nécessitent des fonctions de distribution d'orientation, comme on le verra dans la partie 2.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

### PARTIE 1

Advani S.G. and Tucker III C.L., *The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites*, J. Rheol., 31 (8), 1987, 751-784.

Avèrous L., *Etude par analyse d'images de la microtexture d'un polypropylène chargé fibres de verre broyées. Relations avec les propriétés du matériau*. Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris. Juillet 1995.

Avèrous L., Quantin J.C., Lafon D., Crespy A., *Determination of 3D fibre orientations in reinforced thermoplastics, using scanning electron microscopy*, Acta Stereologica, 14/1, 1995, 69-74.

Avèrous L., Quantin J.C., Crespy A., Lafon D., *Evolution of the three-dimensional orientation distribution of glass fibers in injected isotactic polypropylene*, Polymer Engineering and Science, 37(2), 1997, 329-337.

Avèrous L., Quantin J.C., Crespy A., *Determination of the microtexture of reinforced thermoplastics by image analysis*, Composites Science and Technology, 58, 1998, 377-387.

Bailey R., Rzepka B., *Fibre orientation mechanisms for injection molding of long fibres composites*, Intern. Polymer Processing VI, 1, 1991, 35-41.

Bay R.S. and Tucker III C.L., *Stereological measurement and error estimates for three-dimensional fibre orientation*, Polymer Engineering and Science, 32 (4), 1992, 240-253.

Chen C.-H., Cheng C.-H., *Effective elastic moduli of misoriented short-fiber composites*, Int. J. Solids Structures, 33 (17), 1996, 2519-2539.

Chen C.-H., Wang Y.-C., *Effective thermal conductivity of misoriented short-fiber reinforced thermoplastics*, Mechanics of Materials, 23, 1996, 217-228.

Clarke A.R., Davidson N.C., Archenhold G., *Measurement of fibre direction in reinforced polymer composites*, J. of Microscopy, 171 (1), July 1993, 69-79.

Clarke A.R., Archenhold G., Davidson N.C., *A novel technique for determining the 3D spatial distribution of glass fibres in polymer composites*, Composites Science and Technology, 55, 1995, 75-91.

Cole K.C., Aji A., *Characterization of orientation in Solid phase processing of polymers*. Edited by I.M. Ward, P.D. Coates, M.M. Dumoulin. Series Editor: K.S. Hyun. Hanser Publishers, 2000.

Darlington M.W. and McGinley P.L., *Fibre orientation distribution in short fibre reinforced plastics*, J. Mater. Sci. Lett., 10, 1975, 906-910.

DeHoff R.T. and Rhines F.N., *Quantitative microscopy*, McGraw-Hill, New-York, 1968, 129-131.

Desplentere F., Lomov S.V., Woerdeman D.L., Verpoest I., Wevers M., Bogdanovich A., *Micro-CT characterization of variability in 3D textile architecture*, Composites Science and Technology, 65, 2005, 1920-1930.

- Eberhardt C., Clarke A., *Fibre-orientation measurements in short-glass-fibre composites. Part I: automated, high-angular-resolution measurement by confocal microscopy*, Composites Science and Technology, 61, 2001, 1389-1400.
- Ess J.W., Hornsby P.R., Lin S.Y., Bevis M.J., *Characterisation of dispersion in mineral filled thermoplastics compounds*, Plastics and Rubber Processing and Applications, 4(1), 1984,7-14.
- Fagan A.F., Bell J.M., Briggs G.A.D., *Acoustic microscopy of polymers and polymer based composites*, Fractography and failure mechanisms of polymers and composites, Elsevier Sc. Publishers LTD, London, Chap.6, 1989, 213-228.
- Fischer G. and Eyerer P., *Measuring spatial orientation of short fibre reinforced thermoplastics by image analysis*, Polymer Composites, 9 (4), 1988, 297-304.
- Folgar F., Tucker C.L., *Orientation behavior of fibers in concentrated suspensions*, J. Reinf. Plast. Compos. 3, 1984, 98-119
- Folkes M.J. and Potts H.A., *A rapid technique for observing fibre orientation in carbon fibre-reinforced thermoplastics*, Journal of Materials Science Letters, 4, 1985.
- Folkes M.J., Potts H.A., *Assessment of fiber orientation in composites using infra-red thermal imaging*, Plast. Rubber Process. Appl., 10(2), 1988, 79-84.
- Han K.-H., Im Y.-T., *Numerical simulation of three-dimensional fiber orientation in short-fiber-reinforced injection-molded parts*, Journal of materials processing technology, 124, 2002, 366-371
- Hand G.L., *A theory of anisotropic fluids*, J. Fluid Mech., 13, 1962, 33-46.
- Hamilton R.W., Forster M.F., Dashwood R.J., Lee P.D., *Application of X-ray tomography to quantify the distribution of TiB<sub>2</sub> particulate in aluminium*, Scripta Materiala, 46, 2002, 25-29.
- Heckmann W., Ramsteiner F., *Anwendung des LEITZ-Sägemikrotoms bei der Präparation faserverstärkter Kunststoffe für die Röntgenmicrographie in Rasterelektronenmikroskop*, LEIZ-Mitt. Wiss. u. Techn. Suppl. Bd. I, 6, 1980, 216-221.
- Hermans P.H., *Contribution to the physics of cellulose fibers*, Elsevier, Amsterdam, 1946
- Hine P.J., Duckett R.A., Davidson N.C. and Clarke A.R., *Modelling of the elastic properties of fibre/reinforced composites. I: Orientation measurement*, Composites Science and Technology, 47, 1993, 65-73.
- Jain L.K. and Wetherhold R.C., *Effect of fiber orientation on the fracture toughness of brittle matrix composites*, Acta Metallurgica Materiala, 40 (6), 1992, 1135-1143.
- Jeffery G.B., *The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid*, Proc. Roy. Soc. London, A102, 1922, 161-179.
- Kacir L., Narkis M., Ishai O., *Oriented short glass-fiber composites: I. Preparation and statistical analysis of aligned fiber mats*, Polym. Eng. Sci., 1975, 15, 525-531.

Kacir L., Narkis M., Ishai O., *Oriented short glass-fiber composites: III. Structure and mechanical properties of molded sheets*, Polym. Eng. Sci., 1975, 17, 234-241.

Kamal M.R., Song L., Singh P., SPE Tech. Papers, 1986, 133.

Karger-Kocsis J., *Microstructure and fracture mechanical performance of short-fibre reinforced thermoplastics*, Applications of Fracture Mechanics to Composite Materials, Elsevier Science Publishers edited by K. Friedrich, London, Vol. 6, Part IIB, Chap.6, 1989, 189-247.

Koenig J.L., *NMR imaging of composites*, in Characterization of Composite Materials, ed. Ishida. Butterworth-Heinemann, 1994.

Krenchel H., *Fibre reinforcement*, Akademisk Folag, Copenhagen, 1964

Kriete A., *Undesirable phenomena in 3D image cytometry*, in Visualisation in Biomedical Microscopies-3D Imaging and Computer Applications, VCH Publishers, 1992, 214-218.

Leterrier Y., *Evolution rhéologique et structurale d'un composite polypropylène/fibres de verre lors de son estampage*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, Novembre 1991.

Leterrier Y., G'Sell C., Hiver J.M., *Analyse tridimensionnelle de l'orientation des fibres dans les composites à partir de micrographies électroniques à balayage*, Revue des composites et des matériaux avancés, 2(2), 1992, 143-164.

Lian et al., *Three-dimensional fibre orientation distributions in injection-molded, short fibre-reinforced thermoplastics*, ANTEC'94: Proceedings of Society of Plastics Engineers Annual Technical Conference, San Francisco, Vol. II, 1994, 2316-2320.

Lim S., Kikutani T., White J.L., Kyu T., *Wide angle X-ray diffraction investigation of orientation of chopped fibers in fabricated thermoplastic parts*, Adv. Polym. Technol., 8(3), 1988, 325-334.

Lisy F. et al., *Application of scanning acoustic microscopy to polymeric materials*, J. Appl. Polym. Sci., 52, 1994, 329-352.

Lum, F. G., Carlston, E. F. and Butler, J. C. (U.S. patent 2 766 211. 1956). 1956.

Luyé J.F., *Etude thermophysique du refroidissement du polypropylène injecté*. Thèse de l'ENSAM de Paris, Mars 1999.

McGee S.H., McCullough R.L., *Characterization of fiber orientation in short-fiber composites*, J. Appl. Phys., 55 (5), 1984, 1394-1403.

Mendoza R., *Morphologies induites dans les pièces en polyoléfine moulées par injection*. Thèse de l'ENSAM de Paris, Mai 2005.

Miyamoto, A., Shimizu, S., Yamamiya, K., and Harada, M. (Eur. Patent 0 071 000 A2), 1980.

Mlekusch B., Lehner E.A., Geymayer W., *Fiber orientation in short-fibre-reinforced thermoplastics. I. Contrast enhancement for image analysis*, Composites Science and Technology., 59, 1999, 543-545.

Mlekusch B., *Fiber orientation in short-fibre-reinforced thermoplastics. II. Quantitative measurements by image analysis*, Composites Science and Technology., 59, 1999, 547-560.



- Möginger B. and Eyerer P., *Determination of the weighting function  $g(\beta_i, r, v_f)$  for fibre orientation analysis of short fibre-reinforced composites*, Composites, 22 (5), 1991, 394-399.
- O'Connell P.A., Duckett R.A., *Measurement of fiber orientation in short fiber reinforced thermoplastics*, Composite Science and Technology, 42(4), 1991, 329-347
- Pandita S.D., Verpoest I., *Prediction of the tensile stiffness of weft knitted fabric composites based on X-ray tomography images*, Composites Science and Technology, 63, 2003, 311-325.
- Polato F., Parrini P. and Gianotti G., *A new technique for the measurement of glass fibre orientations in composite materials*, Adv. Comp. Mater., 2, 1980, 1050-1058.
- Roulin-Moloney A.C., *Scanning Electron Microscopy, Fractography and Failure Mechanisms of Polymers and Composites*, Elsevier Applied Sc. Publishers LTD, London, Chap.2, 1989, 43-86.
- Saint-Martin G., Schmidt F.M., Devos P., Levaillant C., *Advanced controls and measurements for the injection molding of a short fiber reinforced polymer* in Proceeding of the 18th International Conference of Polymer Progressing Society, June 16-20, (Guimarès, Portugal), 2002.
- Saint-Martin G., *Etude typologique des défauts structuraux générés au cours de la mise en forme par injection de composites à matrice thermostable renforcés par fibres de verre courtes*. Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Mars 2003.
- Sawyer L.C., Grubb D.T., *Polymer Microscopy*, Chapman and Hall, 1987.
- Singh P., Kamal M.R., *Polym. Compos.*, 10, 1989, 344.
- Stecenko T and Piggott M.R., *Fibre waviness and other mesostructures in a filament wound materials*, Journal of reinforced plastics and composites, 16(18), 1997, 1659-1674.
- Tadmor Z., *J. Appl. Polym. Sci.*, 18, 1974, 1753.
- Tucker III C.L., Folgar F., *A model of compression mold filling*, Polym. Eng. Sci., 23, 1983, 69-73.
- Urabe K. and Yomoda S., *A nondestructive testing method of fiber orientation by microwave*, Adv. Comp. Mater., 1, 1991, 193-208.
- Vaxman A., Narkis M., Siegmann A., Kenig S., *Fibre orientation and rheology in short fibre reinforced thermoplastics*, Journal of Materials Science Letters, 7, 1988, 25-30.
- Vincent M., *Etude de l'orientation des fibres de verre courtes lors de la mise en oeuvre de thermoplastiques charges*. Thèse de l'école Nationale Supérieure des Mines de Paris, Mars 1984.
- Vincent M., Agassant J.F., *Polym. Compos.*, 7, 1986, 76.
- Vincent M., Germain Y., Agassant J.F., *Numerical and experimental study of the fiber motion in reinforced thermoplastic flows*, Rheol. Acta, Suppl., "Progress and trends in rheology II", 1988, 144-147.

Vincent M., Agassant J.F., *Prédiction de l'orientation des fibres de verre lors de l'injection des thermoplastiques renforcés*, dans « initiation à la chimie et à la physico-chimie macromoléculaires, Volume 7 : matériaux composites à base de polymères, GFP, Strasbourg, 1989, 285-314.

Yurgatis S.W., *Measurement of small angle fibre misalignments in continuous fibre composites*, Comp. Sci. Technol.,30, 1987, 279-293.

Zak G., Park C.B. and Benhabib B., *Estimation of three-dimensional fibre-orientation distribution in short-fibre composites by a two-section method*, Journal of Composite Materials, 35 (4), 2001, 316-339.

Zhu Y.T., Blumenthal W.R. and Lowe T.C., *Determination of non-symmetric 3-D fibre-orientation distribution and average fibre length in short-fibre composites*, Journal of Composite Materials, 31 (13), 1997, 1287-1301.



## PARTIE 2

# EVALUATION DES PROPRIETES THERMO-ELASTIQUES : PREDICTIONS ET MESURES

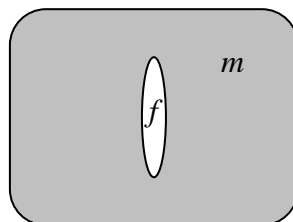
---

### 1. LES MODELES MICRO-MECANIKES

Les modèles micro-mécaniques permettent de relier deux échelles de description du matériau : une échelle microscopique, relative aux hétérogénéités du matériau et une échelle macroscopique, correspondant à l'échelle de la structure étudiée. Les hétérogénéités influencent le comportement macroscopique du matériau et pour prédire les propriétés thermo-mécaniques d'un composite (et mener à bien le calcul de la structure), le principe du passage micro-macro consiste à définir un matériau fictif homogène, équivalent au matériau réel hétérogène d'un point de vue comportement : on parle d'un processus d'homogénéisation du matériau. De nombreux travaux ont été effectués sur les méthodes d'homogénéisation et nous allons exposer dans la suite les principales techniques utilisées dans le cadre de l'élasticité linéaire.

#### 1.1 Préliminaires

On considère un matériau hétérogène, dont le volume élémentaire représentatif (ou v.e.r.) [Suquet, 1985] est représenté sur la figure 2.1 : c'est sur ce volume que sera calculé le comportement du milieu homogène équivalent et dans notre cas, il s'agit d'une matrice polymère  $m$  dans laquelle est immergée une hétérogénéité  $f$  qui représentera la fibre.



**Figure 2.1** : définition du matériau hétérogène

Si un tel matériau est chargé, alors ses contraintes et déformations microscopiques en un point  $M$ , qu'on appelle  $\sigma(x)$  et  $\varepsilon(x)$  respectivement, ne seront pas uniformes d'un point de vue microscopique et le problème élastique correspondant n'est pas facile à résoudre. En revanche, si on considère leurs homologues macroscopiques  $\bar{\sigma}$  et  $\bar{\varepsilon}$ , il sera plus facile de procéder.

En effet, soit un volume  $V$  suffisamment large pour contenir assez d'hétérogénéités. Les contraintes et déformations  $\bar{\sigma}$  et  $\bar{\varepsilon}$  sont obtenues comme les moyennes spatiales de  $\sigma(x)$  et  $\varepsilon(x)$ , alors on a :

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{V} \int_V \sigma(x) dx \quad \text{et} \quad \bar{\varepsilon} = \frac{1}{V} \int_V \varepsilon(x) dx \quad (2.1)$$

Il est également utile de définir les contraintes et déformations moyennes sur chaque phase : on notera  $f$  l'indice relatif à l'hétérogénéité et  $m$  l'indice relatif à la matrice. Ainsi on a :

$$\bar{\sigma}^f = \frac{1}{V_f} \int_{V_f} \sigma(x) dx \quad \text{et} \quad \bar{\sigma}^m = \frac{1}{V_m} \int_{V_m} \sigma(x) dx \quad (2.2)$$

avec bien sûr  $V_f + V_m = V$ . Il en résulte une expression de la contrainte moyenne :

$$\bar{\sigma} = \frac{V_f \bar{\sigma}^f + V_m \bar{\sigma}^m}{V} = v_f \bar{\sigma}^f + v_m \bar{\sigma}^m \quad (2.3)$$

où  $v_f$  et  $v_m$  représentent les fractions volumiques des deux phases  $f$  et  $m$ , respectivement ; et de la déformation moyenne :

$$\bar{\varepsilon} = v_f \bar{\varepsilon}^f + v_m \bar{\varepsilon}^m \quad (2.4)$$

Par ailleurs, on sait que les contraintes et déformations moyennes sont reliées par le tenseur de rigidité  $C$  d'après la relation :

$$\bar{\sigma} = C : \bar{\varepsilon} \quad (2.5)$$

D'après la combinaison des équations 2.3, 2.5 et 2.2, on obtient que :

$$\bar{\sigma} = v_f (C^f : \bar{\varepsilon}^f) + v_m (C^m : \bar{\varepsilon}^m) \quad (2.6)$$

où  $C^f$  et  $C^m$  sont les tenseurs de rigidité de l'hétérogénéité et de la matrice, respectivement. De manière analogue, la déformation moyenne est obtenue par :

$$\bar{\varepsilon} = v_f (S^f : \bar{\sigma}^f) + v_m (S^m : \bar{\sigma}^m) \quad (2.7)$$

où  $S^f$  et  $S^m$  sont les tenseurs de souplesse de l'hétérogénéité et de la matrice, définis comme l'inverse des tenseurs de rigidité :

$$S^f = [C^f]^{-1} \quad \text{et} \quad S^m = [C^m]^{-1} \quad (2.8)$$

et d'une manière générale pour le composite :

$$S = [C]^{-1} \quad (2.9)$$

Afin d'obtenir la matrice de rigidité  $C$  du composite (Eq.2.5) ou son inverse  $S$ , on définit en chaque point du v.e.r. les tenseurs de localisation des déformations et des contraintes, notés  $A$  et  $B$ , qui ont été introduits pour la première fois par Hill [1963]. Ce sont des tenseurs d'ordre 4 et ils correspondent au rapport de la déformation (respectivement la contrainte) moyenne au point considéré sur la déformation (ou contrainte) moyenne dans le composite. Dans les hétérogénéités, par exemple, on a :

$$\begin{cases} \overline{\mathcal{E}}^f = A^f : \overline{\mathcal{E}} \\ \overline{\mathcal{C}}^f = B^f : \overline{\mathcal{C}} \end{cases} \quad (2.10)$$

Ces tenseurs vérifient les propriétés suivantes :

$$\begin{cases} \langle A \rangle = I \\ \langle B \rangle = I \end{cases} \quad (2.11)$$

où  $\langle \rangle$  désigne l'opération de moyenne sur toutes les phases et  $I$  est le tenseur identité d'ordre 4.

Par conséquent, dans la matrice et d'après les équations 2.3 et 2.4, on a :

$$\begin{cases} \overline{\mathcal{E}}^m = \frac{\overline{\mathcal{E}} - v_f \cdot \overline{\mathcal{E}}^f}{v_m} = \left( \frac{1 - v_f \cdot A^f}{v_m} \right) \overline{\mathcal{E}} = A^m : \overline{\mathcal{E}} \\ \overline{\mathcal{C}}^m = \frac{\overline{\mathcal{C}} - v_f \cdot \overline{\mathcal{C}}^f}{v_m} = \left( \frac{1 - v_f \cdot B^f}{v_m} \right) \overline{\mathcal{C}} = B^m : \overline{\mathcal{C}} \end{cases} \quad (2.12)$$

Dans le cas de composites biphasiques, on constate que le tenseur de localisation des déformations (ou des contraintes) de la matrice est fonction du tenseur des déformations (ou des contraintes) dans l'hétérogénéité, aussi on simplifie l'écriture à :

$$A^f = A \quad \text{et} \quad B^f = B \quad (2.13)$$

Une alternative est l'utilisation du tenseur de localisation des déformations  $\hat{A}$ , défini comme le rapport entre la déformation moyenne dans les hétérogénéités et la déformation moyenne dans la matrice :

$$\overline{\varepsilon}^f = \hat{A} : \overline{\varepsilon}^m \quad (2.14)$$

Les deux tenseurs  $A$  et  $\hat{A}$  sont reliés par:

$$A = \hat{A}[(1 - \nu_f)I + \nu_f \hat{A}]^{-1} \quad (2.15)$$

Les équations 2.6 et 2.10 aboutissent au calcul de la contrainte macroscopique dans le composite :

$$\overline{\sigma} = \nu_f C^f A \overline{\varepsilon} + \nu_m C^m \frac{1 - \nu_f A}{\nu_m} \overline{\varepsilon} = [C^m + \nu_f (C^f - C^m) A] : \overline{\varepsilon} \quad (2.16)$$

et d'après l'équation 2.5, on en déduit le tenseur effectif de rigidité du composite :

$$C = C^m + \nu_f (C^f - C^m) A \quad (2.17)$$

De la même manière, en calculant la déformation macroscopique dans le composite à partir des équations 2.7 et 2.10, on obtient le tenseur effectif de souplesse du composite :

$$S = S^m + \nu_f (S^f - S^m) B \quad (2.18)$$

Le fait que les tenseurs  $C$  et  $S$  soient inverses (Eq.2.9) implique que les tenseurs  $A$  et  $B$  ne sont pas indépendants et en particulier :

$$B = C^f : A : S \quad (2.19)$$

Le choix d'utilisation de l'un de ces tenseurs plutôt que de l'autre n'est qu'une question de commodité, les deux pouvant être utilisés.

Il est intéressant de noter que d'une manière plus générale, pour un composite contenant  $N$  phases dans une matrice  $m$ , les équations 2.17 et 2.18 deviennent :

$$C = C^m + \sum_{r=1}^N \nu_r (C^r - C^m) A^r \quad (2.20)$$

et

$$S = S^m + \sum_{r=1}^N \nu_r (S^r - S^m) B^r \quad (2.21)$$

Chaque phase  $r$  constitue une famille de renforts identiques (même matériau et même forme), alignés dans la même direction. Une autre manière de formuler ces équations consiste à écrire que :

$$C = \langle C : A \rangle \quad (2.22)$$

et

$$S = \langle S : B \rangle \quad (2.23)$$

où  $\langle \rangle$  désigne l'opération de moyenne sur toutes les phases.

Finalement, on constate que les caractéristiques élastiques d'un composite sont obtenues à partir des caractéristiques de chacune des phases et dès lors que l'on connaît les tenseurs de localisation de chaque phase. Ceux-ci sont généralement trouvés à partir d'une solution des champs de contraintes ou de déformations microscopiques. Différents modèles micro-mécaniques proposent différentes façons d'obtenir les tenseurs A et B ; cependant, chaque modèle n'est qu'une approximation de la représentation exacte du matériau réel et il s'ensuit que les solutions ne sont que des estimations ou des encadrements des tenseurs A et B et des propriétés effectives du composite.

Les équations 2.22 et 2.23 montrent donc que ce qui différencie les différents modèles micro-mécaniques, c'est la manière dont les tenseurs A et B sont estimés, c'est-à-dire la manière dont les déformations (ou les contraintes) appliquées sur le composite se répartissent entre les phases.

## 1.2 Les techniques d'homogénéisation en thermo-élasticité

### 1.2.1 En élasticité

#### a) Cas d'un composite biphasé unidirectionnel

De nombreux modèles existent dans la littérature dans le cas des composites unidirectionnels.

Parmi ceux-ci, on peut citer les plus connus :

- les bornes de Voigt [1889,1910] et Reuss [1929], de Hashin et Shtrikman [1963], de Willis [1977] ou de Weng [1992], qui encadrent les propriétés élastiques, mais ne les évaluent pas ;
- les modèles « shear-lag » [Cox, 1952 ; Clyne, 1989 ; Robinson et Robinson, 1994], qui n'évaluent que le module longitudinal ;
- les relations d'Halpin-Tsai et leurs extensions [Halpin, 1969 ; Halpin et al., 1976], qui sont des relations semi-empiriques qui procurent l'expression analytique des modules longitudinal et



transverse, et du coefficient de Poisson du composite. Cependant, elles ne tiennent pas compte du rapport de forme des renforts dans tous les modules (c'est le cas du module transverse) ;

- les méthodes d'Eshelby [1957] pour les milieux dilués, de Mori-Tanaka [1973] et auto-cohérente [Hershey, 1954], les plus utilisées ;
- le modèle différentiel [McLaughlin, 1977 ; Norris, 1985], basé sur la méthode d'Eshelby et qui consiste à ajouter successivement une faible fraction volumique de renforts au matériau homogénéisé, jusqu'à obtenir la fraction réelle dans le composite ;
- le modèle de Tendon et Weng [1984], qui explicite les expressions des cinq constantes élastiques indépendantes d'un composite isotrope transverse, sur la base du modèle de Mori-Tanaka ;
- le modèle de Lielens [Lielens et al., 1998], qui combine les bornes inférieure et supérieure de Weng et qui reproduit les résultats de Mori-Tanaka pour les faibles fractions volumiques de renforts, et tend à en améliorer les prédictions pour les fortes concentrations (typiquement 40% à 60%).

On notera le défaut de certains de ces modèles à ne pas fournir toutes les constantes élastiques du composite et on soulignera que le modèle de Tendon et Weng, de Lielens pour les faibles concentrations de renforts et la borne inférieure de Hashin-Shtrikman-Walpole [Weng, 1990] coïncident avec l'approche de Mori-Tanaka.

Nous ne passerons en revue dans cette partie qu'un nombre limité de méthodes, les plus couramment utilisées, à savoir les bornes de Voigt et Reuss, la méthode d'Eshelby, la méthode de Mori-Tanaka et le modèle auto-cohérent. Le but est de rappeler le principe de chacune de ces approches et leurs principales différences. Leur développement est explicité ici dans le cas de matériaux composites à deux phases, constitués d'une matrice et de renforts, tous identiques et alignés.

Dans tous les cas, les mêmes hypothèses de base sont prises en compte :

- les hétérogénéités et la matrice sont linéairement élastiques et isotropes,
- les renforts sont axisymétriques, identiques en forme et taille, et caractérisés par un rapport de forme  $s = l/d$ ,
- les hétérogénéités et la matrice sont parfaitement liées aux interfaces et cela perdure pendant la déformation.

## Bornes de Voigt et Reuss

Les bornes de Voigt et Reuss donnent les estimations les plus simples de A et B, et des propriétés mécaniques du composite. L'approche de Voigt [1889,1910], dite en « déformation uniforme », repose sur l'hypothèse que le renfort et la matrice supporte la même déformation :  $\overline{\varepsilon^f} = \overline{\varepsilon}$ , soit d'après l'équation 2.10,  $A = I$  (où  $I$  est le tenseur identité d'ordre 4) et donc l'équation 2.17 devient :

$$C_{\text{Voigt}} = C^m + V_f (C^f - C^m) \quad (2.24)$$

Ce résultat constitue une borne supérieure des propriétés du composite. Parallèlement, le modèle de Reuss [1929], dit en « contrainte uniforme », implique que  $B = I$  et d'après l'équation 2.18, il donne :

$$S_{\text{Reuss}} = S^m + V_f (S^f - S^m) \quad (2.25)$$

Cela constitue une borne inférieure de la rigidité du composite.

Hill [1952] a d'ailleurs montré que les résultats estimés par Voigt et Reuss constituaient un encadrement des propriétés réelles dans le cas d'un polycristal, puis dans le cas plus général des matériaux hétérogènes [1963].

Si la matrice et les renforts sont isotropes, il est utile de préciser que les bornes de Voigt et Reuss fournissent des résultats isotropes, même pour les composites unidirectionnels, que l'on sait pourtant fortement anisotropes. Il faut aussi ajouter que lorsque les rigidités du renfort et de la matrice sont très différentes, alors les bornes de Voigt et Reuss sont très éloignées l'une de l'autre et n'apportent finalement qu'une information dérisoire quant à la rigidité du composite.

## Problème d'Eshelby de l'inclusion équivalente

La solution par Eshelby [1957, 1961] du problème élastique d'une inclusion ellipsoïdale entourée d'une matrice constitue la base de presque toutes les théories postérieures, développées pour les systèmes renforcés d'hétérogénéités ; c'est le cas notamment des méthodes de Mori-Tanaka et auto-cohérente.

On considère un solide infini, de rigidité  $C^m$ , séparé en deux domaines: l'inclusion et le reste, qu'on appelle la matrice. L'inclusion est alors soumise à une transformation, telle que si elle était isolée, elle acquerrait une déformation uniforme  $\varepsilon^T$ , libre de contrainte. Cette déformation  $\varepsilon^T$  peut être acquise lors d'une transformation de phase ou lors de la combinaison d'un changement de température et d'un

coefficient de dilatation différent dans l'inclusion. Mais en réalité, l'inclusion est entourée par la matrice, qui va gêner sa déformation et ainsi quand la transformation a lieu, il se crée dans l'ensemble des deux domaines un champ de déformation compliqué  $\varepsilon^C(x)$ , qui dépend de sa forme avant la transformation.

Par conséquent, la contrainte dans la matrice est simplement :

$$\sigma^m(x) = C^m : \varepsilon^C(x) \quad (2.26)$$

Dans une inclusion ellipsoïdale, Eshelby a montré que la déformation due à la transformation ne contribue pas à la contrainte, d'où :

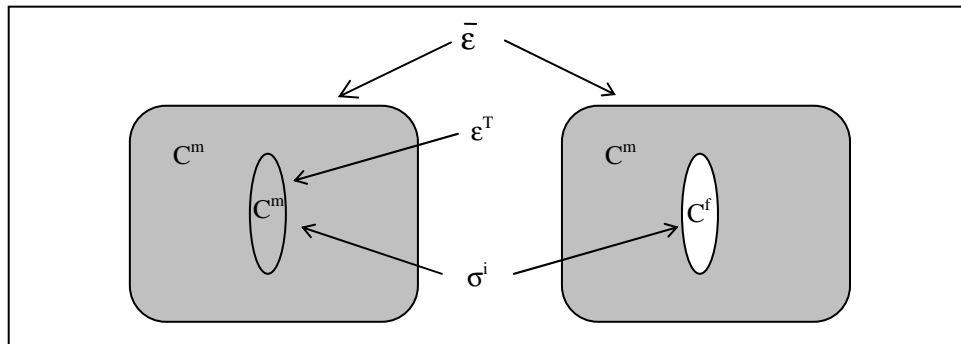
$$\sigma^i = C^m : (\varepsilon^C - \varepsilon^T) \quad (2.27)$$

Le résultat déterminant du travail d'Eshelby a été de montrer que dans une inclusion ellipsoïdale,  $\varepsilon^C$  est uniforme et est relié à  $\varepsilon^T$  par :

$$\varepsilon^C = E : \varepsilon^T \quad (2.28)$$

où  $E$  est le tenseur d'Eshelby [Brown et Clarke, 1975 ; Mura, 1991], qui dépend du rapport de forme de l'inclusion et des constantes élastiques de la matrice.

Dans un deuxième temps, Eshelby a démontré l'équivalence entre une inclusion hétérogène (de rigidité différente  $C^f$  et sans déformation due à la transformation) et une inclusion homogène, de même forme, toutes deux entourées d'une matrice infinie (Figure 2.2).



**Figure 2.2 :** problème de l'inclusion équivalente d'Eshelby

Les deux corps étant soumis à une déformation infinie  $\bar{\varepsilon}$ , on cherche quelle doit être  $\varepsilon^T$ , de sorte qu'ils possèdent les mêmes champs de contraintes et déformations. D'où l'équation :

$$\sigma^i = C^m : (\bar{\varepsilon} + \varepsilon^C - \varepsilon^T) = C^f : (\bar{\varepsilon} + \varepsilon^C) \quad (2.29)$$

et d'après l'équation 2.28 :

$$-(C^m + (C^f - C^m)E) : \varepsilon^T = (C^f - C^m) : \bar{\varepsilon} \quad (2.30)$$

### Modèle d'Eshelby en solution diluée

Le modèle d'Eshelby [1957, 1961 ; Mura, 1991] considère que chaque renfort est entouré d'un milieu infini ayant les propriétés de la matrice et qu'aucune interaction n'existe entre les renforts : cela nécessite qu'ils soient suffisamment éloignés les uns des autres, d'où le nom de solution diluée.

Dans un tel composite, la déformation moyenne est identique à la déformation appliquée  $\bar{\varepsilon}$  et la déformation dans une fibre est uniforme et vaut  $\bar{\varepsilon}^f = \bar{\varepsilon} + \varepsilon^C$ . En utilisant cette dernière relation dans le formalisme de l'Eq.2.30, on peut obtenir la relation entre  $\bar{\varepsilon}^f$  et  $\bar{\varepsilon}$  :

$$[I + E : S^m (C^f - C^m)] \bar{\varepsilon}^f = \bar{\varepsilon} \quad (2.31)$$

et en comparaison avec l'Eq.2.10, on peut identifier le tenseur de localisation des déformations pour la méthode d'Eshelby :

$$A^{Eshelby} = [I + E : S^m (C^f - C^m)]^{-1} \quad (2.32)$$

On constate que ce tenseur est indépendant de la fraction volumique des renforts, puisque la solution d'Eshelby n'est valable que pour les solutions diluées. Par conséquent, les propriétés élastiques obtenues à partir des équations 2.17 et 2.18 seront correctement prédites pour de faibles fractions volumiques, typiquement jusqu'à  $v_f = 1\%$ . Ce modèle a été exploité par Russel [1973] et pour mettre en évidence l'effet du rapport de forme des particules, il a été également étudié par Chow [1977].

Pour des fractions volumiques plus importantes, l'interaction entre renforts doit être prise en compte dans les modèles pour obtenir des estimations réalistes ; les méthodes présentées dans la suite incluent ce point délicat.

Les expressions analytiques du tenseur d'Eshelby  $E$  dans le cas d'une matrice isotrope et pour différentes formes de renforts sont données dans l'annexe 1. Dans le cas plus général où la matrice est anisotrope, il n'y a pas de formulation explicite du tenseur d'Eshelby, qui doit être calculé à partir des intégrales  $\bar{G}$  des fonctions de Green :

$$E_{ijkl} = \frac{1}{8\pi} C_{pqmn} (\bar{G}_{ipjq} + \bar{G}_{jp iq}) \quad (2.33)$$

où  $C$  est la matrice de rigidité du milieu. Le tenseur  $\bar{G}$  a été calculé pour quelques cas [Lin et Mura, 1973] et l'annexe 1 montre les résultats pour un milieu isotrope transverse autour de l'axe 3.

## Méthode de Mori-Tanaka

Le modèle a été développé initialement par Mori et Tanaka [1973], dans le cas d'un matériau contenant une quantité assez élevée d'inclusions, de mêmes propriétés que la matrice ; puis l'extension aux matériaux contenant des hétérogénéités a été introduite par Wakashima et al. [1974]. Le modèle a ensuite été utilisé par de nombreux auteurs [Taya et Chou, 1981 ; Taya et Mura, 1981 ; Weng, 1984], dans le cas de composites contenant plusieurs phases, sans se préoccuper des conditions de validité. Ce n'est qu'en 1987 que Benveniste en fait une interprétation claire et ce point sera détaillé dans le paragraphe 1.3-b qui suit.

On considère un composite contenant un ensemble de fibres identiques et alignées. Lorsqu'il est soumis à une déformation macroscopique  $\bar{\varepsilon}$ , la déformation moyenne dans la matrice est la somme de  $\bar{\varepsilon}$  et d'un terme de perturbation  $\bar{\varepsilon}^p$ , due à toutes les fibres :  $\bar{\varepsilon}^m = \bar{\varepsilon} + \bar{\varepsilon}^p$ . Pour trouver la déformation moyenne dans les renforts  $\bar{\varepsilon}^f$ , on utilise la méthode de l'inclusion équivalente en considérant le cas d'un milieu (de rigidité  $C^m$  et contenant le renfort) soumis à la déformation macroscopique  $\bar{\varepsilon}^m$ . On trouve que :

$$\bar{\varepsilon}^f = A^{Eshelby} \bar{\varepsilon}^m \quad (2.34)$$

donc d'après l'équation 2.14 :

$$\hat{A}^{MT} = A^{Eshelby} \quad (2.35)$$

On en déduit le tenseur de localisation des déformations pour le modèle de Mori-Tanaka (Eq.2.15) :

$$A^{MT} = A^{Eshelby} [(1 - \nu_f)I + \nu_f A^{Eshelby}]^{-1} \quad (2.36)$$

et les caractéristiques élastiques du composite sont obtenues à partir des équations 2.17 et 2.18.

## Modèle de Tandon et Weng

Dans le cas d'un composite isotrope transverse, constitué d'une matrice isotrope renforcée par des renforts isotropes, ellipsoïdaux et alignés selon l'axe 1, Tandon et Weng [1984] ont obtenu l'expression des cinq constantes élastiques indépendantes à partir du modèle de Mori-Tanaka. Ces constantes sont les modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), les modules de cisaillement dans le plan 12 ( $G_{12}$ ) et dans le plan 23 ( $G_{23}$ ), ainsi que le module de compressibilité en déformations planes ( $K_{23}$ ). Leurs expressions sont données par :

$$\left\{ \begin{array}{l} E_1 = E^m / (1 + \nu_f (A_1 + 2\nu_m A_2) / A) \\ E_2 = E^m / [1 + \nu_f (-2\nu_m A_3 + (1 - \nu_m)A_4 + (1 + \nu_m)A_5 A) / 2A] \\ G_{12} = G_m \left( 1 + \frac{\nu_f}{G_m / (G_f - G_m) + 2(1 - \nu_m)S_{1212}} \right) \\ G_{23} = G_m \left( 1 + \frac{\nu_f}{G_m / (G_f - G_m) + 2(1 - \nu_m)S_{2323}} \right) \\ K_{23} = \bar{K}^m \frac{(1 + \nu_m)(1 - 2\nu_m)}{1 - \nu_m(1 + 2\nu_{12}) + \nu_f [2(\nu_{12} - \nu_m)A_3 + (1 - \nu_m(1 + 2\nu_{12}))A_4]} / A \end{array} \right. \quad (2.37)$$

où  $E^m$  et  $\nu_m$  sont le module d'Young et le coefficient de Poisson de la matrice ;  $\nu_f$  est la fraction volumique de renforts ;  $S_{ijkl}$  sont les composantes du tenseur d'Eshelby et les constantes  $A, A_1, \dots, A_5$  dépendent du tenseur d'Eshelby, de la fraction volumique de renforts et des constantes de Lamé  $\lambda_m, G_m$  de la matrice et  $\lambda_f, G_f$  des renforts. Le module  $\bar{K}_m$  est défini par :

$$\bar{K}_m = \lambda_m + \mu_m \quad (2.38)$$

### Modèle auto-cohérent

Le modèle a été développé, à l'origine, par Hershey [1954] et Kröner [1958] dans le cas des polycristaux, puis adapté plus tard aux matériaux composites renforcés de particules sphériques par Hill [1965] et Budianski [1965]. L'application aux matériaux chargés de fibres courtes s'est faite en 1980 par Chou et al.

Ce modèle, lui aussi construit à partir des résultats d'Eshelby, consiste à placer successivement les renforts dans un milieu dit homogène équivalent, ayant les caractéristiques mécaniques du composite. Le tenseur de localisation est obtenu à partir de l'équation 2.32, en donnant à la matrice les propriétés du composite :

$$A^{SC} = [I + E : S(C^f - C)]^{-1} \quad (2.39)$$

Les tenseurs  $S$  et  $C$  de la matrice entourant les fibres ne sont pas connus, mais la résolution se fait par méthode itérative, en prenant par exemple pour première valeur de  $C$  le résultat de la méthode d'Eshelby. La méthode est répétée avec les nouvelles estimations de  $C$  et la convergence du processus donne la solution  $A^{SC}$ . Notons cependant que le tenseur d'Eshelby doit être recalculé à chaque itération, puisque les propriétés de la matrice changent : ce calcul peut s'avérer coûteux en temps dans le cas général. En effet, il est important de noter que dans l'équation 2.39, le tenseur d'Eshelby  $E$  est calculé dans le cas d'un milieu isotrope transverse (autour de l'axe des renforts) et son expression (Eq.2.33) n'est plus aussi simple que dans le cas isotrope. Les calculs nécessaires dans de tels milieux sont néanmoins donnés par Lin et Mura [1973], Chou et al. [1979] et dans le livre de Mura [1991].

Il est reconnu que le composite ainsi considéré est plus rigide que le composite réel, puisque le renfort est entouré par le composite lui-même et la zone de matrice, plus souple, entourant le renfort est négligée.

## **Synthèse**

Les modèles cités (sauf les bornes de Voigt et Reuss) utilisent le calcul du tenseur d'Eshelby des renforts. On retiendra que :

- les bornes de Voigt et Reuss permettent de faire un encadrement des propriétés du composite, mais sont très éloignées l'une de l'autre si le contraste entre les caractéristiques des deux phases est très élevé ;
- le modèle d'Eshelby prédit correctement les propriétés d'un composite dont la fraction volumique de renforts est faible ;
- le modèle de Mori-Tanaka est valable pour des fractions volumiques de renforts allant jusqu'à 20 à 30% en volume ;
- le modèle auto-cohérent permet une estimation des propriétés du composite par une méthode itérative. Ce dernier modèle convient mieux dans le cas où le taux de renforts est important.

On peut préciser que les modèles de Mori-Tanaka et auto-cohérent prennent en compte l'interaction entre fibres, c'est pourquoi ils sont valables pour une plus grande fraction volumique de renforts que la méthode d'Eshelby.

Enfin, on notera que des articles, tels que celui de Tucker et Liang [1999] ou celui de O'Regan et al. [1999], comparent les modèles micro-mécaniques les plus connus. Ils montrent que le modèle de Mori-Tanaka semble le mieux adapté pour la modélisation du comportement élastique de composites à matrice thermoplastique chargée de fibres courtes.

### **b) Cas d'un composite contenant plus de deux phases**

De nombreux auteurs ont généralisé les modèles aux cas de composites contenant plus de deux phases : c'est le cas de Taya et Chou [1981], Taya et Mura [1981] et Weng [1984] pour le modèle de Mori-Tanaka.

Dans cette partie, on va chercher à généraliser les résultats précédents au cas d'un composite contenant  $N$  phases : chaque phase  $r$  est constituée d'une famille de renforts identiques (même matériau et même forme), alignés dans la même direction. Les calculs des tenseurs de rigidité et de souplesse s'effectuent à partir des Eq.2.20 et 2.21 : la difficulté réside dans l'estimation des tenseurs de localisation  $A^r$  (ou  $B^r$ ) pour chaque phase  $r$ .

Dans le cas particulier de l'approche de Voigt, en « déformation uniforme », le problème est simple car  $\overline{\varepsilon^r} = \overline{\varepsilon}$  dans toutes les phases et  $A^r = I$ . Par conséquent, l'équation 2.24 se généralise simplement à :

$$C_{\text{Voigt}} = C^m + \sum_{r=1}^N v_r (C^r - C^m) = \sum_{r=0}^N v_r C^r \quad (2.40)$$

où  $v_r$  et  $C^r$  sont la fraction volumique et le tenseur de rigidité de la phase  $r$ , respectivement.

Dans l'approche de Reuss, en « contrainte uniforme »,  $\overline{\sigma^r} = \overline{\sigma}$  et  $B^r = I$ , ce qui conduit à une généralisation de l'Eq.2.25 :

$$S_{\text{Reuss}} = S^m + \sum_{r=1}^N v_r (S^r - S^m) = \sum_{r=0}^N v_r S^r \quad (2.41)$$

Dans les modèles plus compliqués (Mori-Tanaka, auto-cohérent,...), on a montré qu'il est possible d'estimer les tenseurs A ou B des renforts dans le cas d'un composite biphasique (Paragraphe 1.2.1-a). Lorsque qu'en revanche on a un ensemble de N familles de renforts, la question se pose quant à l'évaluation des tenseurs de localisation de chaque phase.

Une première façon consiste à utiliser directement l'expression de ces tenseurs dans le cas d'un composite biphasique (Eq.2.32, 2.36 et 2.39 pour les modèles cités avant) pour chacune des N phases. Donc on a :

$$C = C^m + \sum_{r=1}^N v_r (C^r - C^m) A^r \quad (2.20)$$

et par exemple dans le cas de Mori-Tanaka :

$$A^{MT r} = A^{Eshelby r} [(1 - v_r) I + v_r A^{Eshelby r}]^{-1} \quad (2.42)$$

Il faut noter que le tenseur d'Eshelby  $E^r$  de chaque phase est différent, c'est pourquoi le tenseur  $A^{Eshelby r}$  doit être calculé pour chaque phase aussi. Bien sûr cette méthode est très approximative, puisqu'elle néglige complètement les interactions entre les différentes familles de renforts.

Une autre façon de procéder a été proposée par Peyroux [1990] et consiste à considérer successivement les composites biphasiques matrice  $m$  - phase  $r$  et d'en calculer les caractéristiques. Il en déduit les propriétés du composite à N phases en moyennant les rigidités (ou les souplesses) de tous les composites biphasiques. Ainsi pour chaque biphasé, le tenseur de localisation correspondant  $A^r$  ou  $B^r$  est estimé et la matrice de rigidité est :

$$C_{\text{comp}}^r = C^m + v_r (C^r - C^m) A^r \quad (2.43)$$



En moyennant sur les N familles, le tenseur effectif de rigidité (ou de souplesse) obtenu est :

$$C = C^m + \sum_{r=1}^N \frac{V_r}{V_f} V_r (C^r - C^m) A^r \quad (2.44)$$

où  $V_f = 1 - v_m$  est la fraction volumique totale de renforts dans la matrice.

Par rapport à l'Eq.2.20, le tenseur de localisation de chaque phase est pondéré du rapport  $V_r/V_f$ , qui représente la proportion de renforts de la famille  $r$  par rapport à la quantité total de renforts. Le résultat de l'Eq.2.44 semble plus correct, car d'une certaine manière, il tient compte de la présence de toutes les familles de renforts.

### c) Prise en compte de l'orientation

Il est évident que l'orientation des renforts influence le comportement macroscopique du composite, tel que sa résistance, son élasticité, sa conductivité,...[Dunn et Ledbetter, 2000 ; Wang et Pyrz, 2004]. Bien que la littérature soit très riche dans le cas des composites unidirectionnels, beaucoup moins d'études prennent en compte l'orientation des renforts : peu de travaux ont été réalisés pour des distributions isotropes des renforts et on peut cependant citer Christensen et Waals [1972], Tandon et Weng [1986], Benveniste [1987], Taya et al. [1990], Chen et al. [1992] ; et encore moins de chercheurs se sont intéressés à des distributions d'orientations quelconques [Takao et al. 1982 ; Dunn et al., 1996 ; Dunn et Ledbetter, 2000].

Dans le cas d'une distribution bidimensionnelle des renforts, plusieurs auteurs [Wu et McCullough, 1977 ; McGee, 1982] proposent de prendre en compte l'orientation en intégrant des fonctions d'orientation telles que celles d'Hermans :  $f_p = 2 \langle \cos^2 \phi \rangle - 1$  et  $g_p = \{8 \langle \cos^4 \phi \rangle - 3\} / 5$  ; d'autres utilisent la théorie des stratifiés [Ashton et al., 1969 ; Tsai et Pagano, 1969 ; Fu et Lauke, 1998]. Ces modèles sont limités par leur caractère bidimensionnel, alors qu'une distribution d'orientation tridimensionnelle est nécessaire dans le cas de composites injectés et chargés de fibres courtes.

Il y a environ 20 ans, Advani et Tucker [1987] ont développé une extension de la théorie des stratifiés de Halpin-Pagano [1969] et ont proposé de procéder en deux étapes pour évaluer les propriétés effectives du composite : en premier lieu, les propriétés du composite unidirectionnel sont évaluées et dans une deuxième étape, une opération de moyenne est appliquée sur toutes les directions. Cette méthode a été appliquée par plusieurs auteurs [Lielens et al., 1998 ; Mlekusch, 1999 ; Huang, 2001 ; Gusev et al., 2002]. Pour la première étape, toutes les théories évoquées au paragraphe 1.2.1-a peuvent être utilisées ; dans la deuxième étape, l'état d'orientation doit être caractérisé. La fonction de distribution d'orientation, qui décrit la probabilité de trouver des renforts avec une certaine orientation

dans le matériau, dépend de deux angles (comme on a montré dans la partie 1). Dans ce cas, l'opération de moyenne du tenseur de rigidité  $C^{UD}$  du composite unidirectionnel se traduit par :

$$\mathbf{C} = \int_{\Omega} \mathbf{C}^{UD}(\theta, \phi) \psi(\theta, \phi) d\Omega \quad (2.45)$$

où  $\Omega$  représente une sphère unitaire et  $\psi(\theta, \phi)$  la fonction de distribution des orientations. Pierard et al. [2004] ont utilisé cet opérateur, mais il n'est pas facile à manipuler dans les codes commerciaux de simulation et par conséquent, il est peu usité.

En général, les auteurs recommandent plutôt l'utilisation de tenseurs d'orientation, qui sont beaucoup plus compacts et peuvent être calculés par les codes de calculs ; cette démarche a été adoptée par Advani et Tucker [1987] et Mlekusch [1999], dans le cas d'une matrice isotrope chargée de renforts isotropes. Pour être applicable, leur méthode nécessite que le composite unidirectionnel de la première étape soit isotrope transverse : cette condition est respectée si les deux phases sont isotropes ou isotropes transverses avec l'axe d'isotropie confondu avec l'axe d'alignement des renforts. Dans ces conditions particulières, l'équation 2.45 devient fonction des tenseurs d'orientation, c'est-à-dire :

$$\begin{aligned} C_{ijkl} = & C_1 a_{ijkl} + C_2 (a_{ij} \delta_{kl} + a_{kl} \delta_{ij}) + C_3 (a_{ik} \delta_{jl} + a_{il} \delta_{jk} + a_{jl} \delta_{ik} + a_{jk} \delta_{il}) \\ & + C_4 \delta_{ij} \delta_{kl} + C_5 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \end{aligned} \quad (2.46)$$

où les 5 constantes  $C_i$  sont calculées à partir des 5 constantes indépendantes caractérisant le comportement isotrope transverse du composite unidirectionnel (Eq. 2.71).

On réalise que dans cette approche, les tenseurs d'orientation d'ordres 2 et 4 sont indispensables à la détermination du tenseur de rigidité du composite. A moins de mesurer l'orientation de manière expérimentale, le tenseur d'ordre 4 n'est généralement pas connu : en effet, les logiciels de simulation (tels que Moldflow®) ne donnent en général que les tenseurs d'ordre 2. Des relations ont alors été mises au point pour relier le tenseur d'ordre 4 au tenseur d'ordre 2 : ce sont les équations de fermeture. De gros efforts ont été faits ces dernières années pour essayer de développer des équations précises et parmi celles existantes, on peut citer les plus connues, notamment :

- les équations linéaire, quadratique et hybride [Advani et Tucker, 1987], dont les expressions existent tant pour des distributions dans un plan que pour des distributions tridimensionnelles ;
- l'équation naturelle, développée par Verleye et Dupret [1993], mais dont la formulation n'existe que pour des distributions dans un plan ;
- les équations orthotropes [Cintra et Tucker, 1995 ; Chung et Kwon, 2001].

Dans leurs articles, Munganga et al. [2000] et Azaiez [2000] testent la stabilité thermodynamique d'une sélection d'hypothèses de fermeture. Il en ressort que seules les équations linéaire et

quadratique, ainsi que l'équation naturelle pour les cas bidimensionnels, obéissent au 2<sup>nd</sup> principe de la thermodynamique ; l'approximation orthotrope de Cintra et Tucker [1995], par contre, n'y obéit pas.

Enfin, on peut signaler que d'autres auteurs tiennent compte de l'orientation en incorporant un facteur d'orientation dans des modèles aussi simples qu'une loi de mélange [Krenchel, 1964 ; O'Regan et al., 1999].

## 1.2.2 En thermo-élasticité

Dans les matériaux thermo-élastiques, les contraintes sont reliées à la déformation totale, mais aussi à la variation de température, de sorte que l'équation 2.5 définie en élasticité devienne :

$$\bar{\sigma} = C : (\bar{\varepsilon} - \alpha \Delta T) = C : \bar{\varepsilon} - \kappa \Delta T \quad (2.47)$$

où  $\alpha$  est le tenseur des dilatations et  $\kappa$  est le tenseur des contraintes thermiques (tel que  $\kappa = C : \alpha$ ) ; tous deux sont des tenseurs d'ordre 2, symétriques.

Le problème élastique ayant été traité précédemment, les rigidités (ou souplesses) effectives sont connues et le but de cette partie est de prédire le tenseur  $\alpha$  (ou  $\kappa$ ) du composite. L'équation 2.47 suggère fortement que les propriétés thermo-élastiques d'un composite sont étroitement liées aux caractéristiques élastiques. Ceci est confirmé par les travaux de Hill [1964], qui permettent de démontrer que de la même manière qu'en élasticité, les rigidités effectives s'obtiennent par la relation  $C = \langle C : A \rangle$  (Eq.2.22), les coefficients du tenseur des contraintes thermiques s'obtiennent par [Castelnau, 2003] :

$$\kappa = \langle {}^t A : \kappa \rangle \quad (2.48)$$

où  $\langle \rangle$  désigne l'opération de moyenne sur toutes les phases et l'indice  $t$  indique la transposée de A.

Cette relation est exacte tant que A est connu de manière exacte ; souvent on estime ce tenseur avec un modèle d'homogénéisation en élasticité et par cohérence, on choisira le même modèle en élasticité et en thermo-élasticité.

Si on raisonne en terme de déformation, on a en thermo-élasticité :

$$\bar{\varepsilon} = S : \bar{\sigma} + \alpha \Delta T \quad (2.49)$$

avec  $S = \langle S : B \rangle$  (Eq.2.23) et :

$$\alpha = \langle {}^t B : \alpha \rangle \quad (2.50)$$

Dans le cas de biphases anisotropes, mais chargés de renforts isotropes, et à partir des travaux de Hill, Levin [1967] a développé des relations exactes permettant de déterminer les coefficients de dilatation du composite à partir de ses modules élastiques effectifs et des propriétés de chaque phase. C'est ainsi que pour un composite constitué des phases 1 et 2, l'équation 2.48 devient :

$$\boldsymbol{\kappa} = (\mathbf{C}^2 - \mathbf{C}) : (\mathbf{C}^2 - \mathbf{C}^1)^{-1} : \boldsymbol{\kappa}^1 + (\mathbf{C}^1 - \mathbf{C}) : (\mathbf{C}^1 - \mathbf{C}^2)^{-1} : \boldsymbol{\kappa}^2 \quad (2.51)$$

où  $\mathbf{C}$  est le module homogénéisé du composite et les indices 1 et 2 se réfèrent aux phases 1 et 2.

De même, l'équation 2.50 devient :

$$\boldsymbol{\alpha} = (\mathbf{S}^2 - \mathbf{S}) : (\mathbf{S}^2 - \mathbf{S}^1)^{-1} : \boldsymbol{\alpha}^1 + (\mathbf{S}^1 - \mathbf{S}) : (\mathbf{S}^1 - \mathbf{S}^2)^{-1} : \boldsymbol{\alpha}^2 \quad (2.52)$$

Cette méthode très simple a été utilisée avec succès par Aboudi [1984] et Peyroux [1990] pour des composites chargés de fibres.

Les coefficients de dilatation dans le cas plus général de composites ayant plus de deux phases ont été étudiés par Shapery [1968] : il a développé, à partir de raisonnements énergétiques, des bornes permettant d'encadrer les coefficients de dilatation dans tous types de composites (isotropes ou non, quel que soit le nombre de phases) renforcés par des phases isotropes. Il s'avère que dans le cas particulier des composites unidirectionnels renforcés de fibres continues, les bornes correspondent à une solution exacte, et par conséquent des formules simples permettent d'évaluer les coefficients de dilatation longitudinal et transverse. Un peu plus tard, Halpin [1969] s'est intéressé aux composites chargés de fibres courtes et a dérivé des expressions pour les coefficients de dilatation, en moyennant les bornes de Shapery : il obtient notamment un coefficient transverse quasi indépendant de la géométrie des renforts. Rosen et Hashin [1970] ont défini des bornes (en utilisant des principes d'énergie) pour les coefficients de dilatation dans le cas général de composites contenant n'importe quel nombre de phases anisotropes : si les phases sont isotropes, on retrouve les bornes de Shapery et si le composite ne contient que deux phases, on obtient les résultats de Levin. En 1974, Das Gupta a généralisé les bornes de Shapery au cas plus général de composites renforcés de phases anisotropes et en 1997, Gibiansky et Torquato établissent de nouvelles bornes plus serrées que celles de Rosen et Hashin.

Dans leur article, Bowles et Tompkins [1989] comparent les coefficients de dilatation obtenus expérimentalement à ceux prédits par différentes analyses (Shapery, Rosen et Hashin, Chamberlain, Chamis [1984] et éléments finis), dans le cas de composites unidirectionnels, renforcés de fibres de carbone (continues et isotropes transverses).

Plus récemment Maewal et Dandekar [1987] ont abordé le problème thermo-élastique différemment : ils considèrent des biphases (matrice chargée de fibres courtes), dans lesquels à la notion classique de tenseur de localisation des déformations, ils ajoutent le tenseur  $\hat{b}$  des déformations thermiques. L'équation 2.14 en élasticité devient :

$$\overline{\varepsilon^f} = \hat{A} : \overline{\varepsilon^m} + \hat{b} \Delta T \quad (2.53)$$

Ces tenseurs  $\hat{A}$  et  $\hat{b}$  sont estimés à partir de la méthode de l'inclusion équivalente (qui utilise les résultats d'Eshelby). Plus tard, Benveniste et Dvorak [1990] ont établi une relation exacte entre ces tenseurs de concentration  $\hat{A}$  et  $\hat{b}$ .

### Prise en compte de l'orientation

La plupart des modèles en thermo-élasticité ont été développés dans le cas de composites unidirectionnels. Pour tenir compte de l'orientation réelle du composite, plusieurs auteurs [Advani et Tucker, 1987 ; Mlekusch, 1999] proposent également de procéder en deux étapes, comme en élasticité : les coefficients de dilatation du composite unidirectionnel sont calculés, puis moyennés suivant toutes les directions.

D'autre part, sur le même modèle qu'en élasticité, il est possible d'obtenir des expressions des coefficients de dilatation en fonction de l'orientation en incorporant les deux paramètres d'Hermans  $f_p$  et  $g_p$  [Wu et McCullough, 1977 ; McGee, 1982 ; Wetherhold et Scott, 1990].

Enfin, il faut préciser que la méthode de Levin (valable pour les biphases seulement) peut être utilisée quand on connaît les tenseurs de rigidité effectifs d'un composite non unidirectionnel : de cette manière, l'orientation des renforts est directement prise en compte.

### Synthèse

Dans le cas de la thermo-élasticité, on remarque que deux approches prédominent dans la littérature : l'équation de Levin et les bornes de Shapery.

La première permet de relier directement les coefficients de dilatation aux propriétés élastiques effectives du composite ; cela assure la cohérence des résultats en élasticité et en thermo-élasticité. Par ailleurs, l'équation de Levin a l'avantage de pouvoir prendre en compte l'effet de l'orientation des renforts, si les modules en tiennent compte. En revanche, elle est limitée aux composites à deux phases.

La deuxième approche, basée sur des considérations d'énergie, apporte un encadrement des coefficients de dilatations ; ce n'est que dans des cas particuliers (composites chargés de fibres

alignées) que les bornes correspondent à une solution exacte et permettent une estimation de ces coefficients.

## **1.3 Les modèles développés**

### **a) Choix du modèle**

Comme l'expliquent Gilormini et Bréchet [1999], le choix d'un modèle est gouverné par plusieurs paramètres, et notamment par la géométrie du milieu hétérogène, le contraste mécanique entre les phases et la fraction volumique des renforts.

Rappelons que dans notre cas, nous étudions des matériaux composites formés d'une matrice polymère (polyamide aromatique) renforcée de fibres courtes de verre. Ces matériaux sont injectés ; il en résulte une distribution d'orientation des fibres dans la matrice. Deux taux de fibres sont considérés : 30% en poids (16.5% de fibres en volume) pour le grade 1002 et 50% en poids (31.6% en volume) pour le grade 1022. Nous faisons l'hypothèse que nos deux phases sont isotropes.

Dans la configuration d'un composite biphasique matrice-fibres (courtes et alignées), Tucker et Liang [1999] ont montré que parmi un large choix de modèles, l'approche de Mori-Tanaka [1973 ; Benveniste, 1987] donne des résultats très satisfaisants par rapport aux simulations par éléments finis. Ceci est cohérent avec les comparaisons qu'a réalisées antérieurement Peyroux [1990, 1992] avec des résultats expérimentaux. Un taux de fibre de 50% en poids est pratiquement une limite maximum dans le cas des thermoplastiques chargés de minéraux et injectés. Au-delà, l'augmentation de viscosité est telle que d'importants glissements à la paroi des moules apparaissent et nuisent à la qualité des pièces. Or le modèle de Mori-Tanaka semble s'appliquer jusqu'à de tels taux volumiques, un des objectifs de l'étude est de le vérifier.

De plus, ce modèle est très facile à mettre en œuvre car un calcul explicite permet d'obtenir les propriétés élastiques du composite unidirectionnel ; de plus le tenseur d'Eshelby correspondant à la matrice isotrope est très simple à calculer. L'objectif de l'étude est aussi d'intégrer les modèles dans un code de calcul par éléments finis, ainsi il est préférable d'utiliser une méthode explicite pour la détermination des propriétés élastiques du composite. Or le modèle auto-cohérent qui est plus adapté aux forts taux de renfort, demande une procédure itérative dans laquelle le tenseur d'Eshelby nécessite une intégration des fonctions de Green, puisque la matrice devient isotrope transverse avec les deux milieux de départ isotropes.

Le modèle de Mori-Tanaka s'avère être un bon choix pour la prédiction des propriétés élastiques du composite unidirectionnel.

Pour prendre en compte l'orientation réelle des fibres, on pourra appliquer des opérations de moyenne (comme expliqué au paragraphe 1.2.1-c) sur les propriétés homogénéisées du composite unidirectionnel (procédure en deux étapes). Mais on peut aussi noter que la version initiale de Mori-Tanaka a été étendue au cas de composites à N phases désorientées [Weng, 1990 ; Qiu et Weng, 1990] : une formule analytique qui inclut ces paramètres a été développée et il est ainsi possible d'introduire directement une distribution d'orientation ou de longueur pour chaque famille de renforts, sans avoir à procéder en deux étapes.

Enfin, concernant la thermoélasticité, l'équation de Levin combinée avec le modèle de Mori-Tanaka (pour estimer les modules effectifs) a été utilisée avec succès par Peyroux [1990], qui a comparé les prédictions aux données expérimentales de Wakashima et al. [1974] dans le cas d'un composite cuivre-tungstène à fibres longues, et par Bourgeois [1994] dans le cas d'un composite à matrice d'aluminium renforcé par des particules de carbure de silicium (de rapport de forme 1.3).

Pour toutes les raisons expliquées ci-dessus, le modèle de Mori-Tanaka s'impose clairement comme le meilleur choix pour notre composite et sera la base de tous nos calculs thermo-mécaniques.

## **b) Remarques sur les conditions de validité du modèle de Mori-Tanaka**

Le modèle de Mori-Tanaka [1973], initialement développé pour les matériaux renforcés d'inclusions, a très vite été adapté aux composites unidirectionnels [Wakashima et al., 1974], puis aux composites contenant plusieurs phases [Taya et Chou, 1981 ; Taya et Mura, 1981 ; Weng, 1984]. Il a été étendu aux orientations isotropes des renforts [Tendon et Weng, 1986 ; Duschlbauer, 2003] et récemment aux milieux visco-élastiques [Brinson et Lin, 1998 ; Fisher et Brinson, 2001]. Ce modèle a remporté un tel engouement que beaucoup d'auteurs l'ont employé sans se préoccuper des conditions de validité. Ce n'est qu'en 1987 que Benveniste met clairement en évidence le problème et ce point mérite d'être détaillé.

Dans sa formulation la plus générale, le modèle de Mori-Tanaka prédit les propriétés élastiques d'un composite contenant une population de renforts de propriétés mécaniques différentes ; pour chaque famille, il est possible de considérer une distribution d'élancement et d'orientation. Mais cette extension aux matériaux multi-phases est en fait délicate : Benveniste [1987] a observé que d'une manière générale, le tenseur de rigidité (ou de souplesse) prédit par le modèle n'est pas symétrique, alors que l'on sait que ces tenseurs sont toujours symétriques [Nemat-Nasser et Hori, 1993]. De plus, il a mis en évidence avec ses collègues [Benveniste et al., 1989] le fait que pour un composite à trois phases, contenant des renforts alignés, les modules obtenus par Mori-Tanaka sont dépendants des modules de la matrice quand on considère un taux limite de renforts égal à 1. Enfin, Norris [1989] a

montré que les résultats de Mori-Tanaka pouvaient ne pas respecter les bornes de Hashin et Shtrikman. Il apparaît donc indispensable, avant d'utiliser ce modèle, de fixer les conditions qui vont assurer la symétrie des tenseurs élastiques et l'indépendance de ces derniers aux propriétés de la matrice quand sa fraction volumique tend vers 0.

Plusieurs auteurs ont étudié ces points sensibles [Qiu et Weng, 1990 ; Benveniste, 1991 ; Ferrari, 1991] et il ressort que :

- pour un composite biphasé, les tenseurs élastiques sont toujours symétriques tant que tous les renforts sont parfaitement alignés ou répartis de manière complètement isotrope (et ce, quelle que soit leur forme) ; si une distribution d'orientation est considérée, alors la symétrie est garantie si les deux phases (matrice et renfort) sont isotropes. On voit donc que pour des fibres de carbone par exemple, dont le comportement est isotrope transverse, la symétrie n'est pas assurée si celles-ci sont réparties selon une fonction de distribution d'orientation !
- pour un composite contenant plus que deux phases, la symétrie du tenseur effectif des rigidités (ou des souplesses) est garantie si toutes les inclusions de matériaux différents ont la même forme (et le même rapport de forme) et la même orientation.

Il faut préciser que parmi les conditions citées ci-dessus pour les biphasés, seuls les cas où les renforts sont parfaitement alignés ou si les deux phases sont isotropes vont engendrer des tenseurs élastiques indépendants des propriétés de la matrice quand la concentration de renforts tend vers 1.

Les articles publiés récemment sur le sujet confirment les conclusions précédentes pour les composites biphasés et les multi-phases [Li, 1999 ; Schjødt-Thomsen et Pyrz, 2001 ; Pierard et al., 2004].

Nous avons testé la symétrie d'un composite à 3 phases isotropes, contenant des plaquettes de mica et des fibres de verre ayant le même axe de révolution : les tenseurs effectifs de rigidité et de souplesse obtenus par Mori-Tanaka sont symétriques, mais ce cas n'est pas très réaliste expérimentalement. En revanche, lorsque les axes de révolution sont perpendiculaires, c'est-à-dire que les plaquettes de mica et les fibres sont alignées, les tenseurs obtenus ne sont plus symétriques.

### **c) Les modèles utilisés en élasticité**

Comme expliqué précédemment, nous avons choisi le modèle de Mori-Tanaka pour nos calculs élastiques. Les deux phases en présence dans notre composite sont isotropes : les conditions de symétrie des tenseurs élastiques et le cas limite pour un taux de fibres tendant vers 1 sont respectés ; on peut donc utiliser le modèle de Mori-Tanaka sans aucun problème. Mais sur cette base, il y a plusieurs approches possibles : on peut soit utiliser la formulation la plus générale du modèle, qui prédit les propriétés mécaniques d'un composite contenant plusieurs phases de propriétés, forme et orientation différentes ; soit procéder en deux étapes, en calculant les propriétés du composite



unidirectionnel, puis en moyennant les résultats sur toutes les orientations. Ces deux approches, que l'on va qualifier de « méthode directe » et « procédure en deux étapes », respectivement, sont maintenant expliquées en détail. Dans les deux cas, un contact parfait est supposé entre la matrice et les fibres, qui ont une symétrie axiale.

### i) Méthode directe de Mori-Tanaka

Dans le cas le plus général, pour un composite constitué d'une matrice  $m$  et de  $N$  phases  $r$ , la formule de Mori-Tanaka pour les rigidités s'écrit [Benveniste, 1987] :

$$C = C^m + \sum_{r=1}^N v_r \left\langle (C^r - C^m) A^{Eshelby-r} \right\rangle \left[ v_m I + \sum_{r=1}^N v_r \left\langle A^{Eshelby-r} \right\rangle \right]^{-1} \quad (2.54)$$

où  $C$  est le tenseur de rigidité effectif du composite ;  $C^m$  et  $C^r$  sont les rigidités de la matrice et de la phase  $r$ , respectivement. Les crochets  $\langle \rangle$  représentent une moyenne sur toutes les orientations possibles. La fraction volumique de la phase  $r$  est notée  $v_r$  et la fraction volumique totale de renforts est  $v_f = \sum_{r=1}^N v_r = 1 - v_m$ . Enfin, le tenseur  $A^{Eshelby-r}$  a été défini précédemment dans l'équation 2.32, d'où  $A^{Eshelby-r} = \left[ I + E^r S^m (C^r - C^m) \right]^{-1}$ ,  $E^r$  étant le tenseur d'Eshelby de la phase  $r$ . Cette formule, capable de considérer une distribution d'élancement et d'orientation pour chaque famille de renforts, a été appliquée récemment encore par de nombreux auteurs [Biolzi et al., 1994 ; Schjødt-Thomsen et Pyrz, 2001 ; Wang et Pyrz, 2004].

Dans nos prédictions, nous adopterons une valeur moyenne d'élancement des fibres, car introduire une distribution d'élancement modifie très peu les rigidités effectives du composite [Takao et Taya, 1987 ; Bourgeois, 1994]. Il s'ensuit que dans notre composite, les fibres ont la même forme et le même comportement mécanique, seule leur orientation est différente. Le problème se simplifie, puisque le tenseur d'Eshelby et le tenseur de rigidité des fibres sont constants dans le repère de la fibre, soit  $E^r = E$  et  $C^r = C^f$  dans le repère de la fibre et par conséquent le tenseur de localisation est lui aussi constant :  $A^{Eshelby-r} = A^{Eshelby}$ . Pour pouvoir faire la somme des contributions de chaque fibre, il va falloir transformer les propriétés de chaque fibre dans le repère de référence.

Le calcul (Eq.2.54) est finalement basé sur des transformations de tenseurs d'ordre 4, suivies d'une moyenne dans l'espace. Rappelons les règles de transformation pour les tenseurs d'ordre 4. Le tenseur de rigidité  $C_{mnop}^f$  exprimé dans le repère local de la fibre est lié au tenseur de rigidité  $C_{ijkl}^f$  dans le repère global d'injection (1,2,3) par la loi :

$$C_{ijkl}^f = t_{im} t_{jn} t_{ko} t_{lp} C_{mnop}^f \quad (2.55)$$

où  $[t_{ij}]$  est la matrice de passage du repère local  $(u_r, u_\theta, u_\phi)$  au repère global  $(1,2,3)$ . On précise que  $u_r$  définit l'axe de la fibre et on rappelle que dans le repère d'injection, l'axe 1 est la direction d'écoulement et l'axe 3 est la direction de l'épaisseur.

On a montré dans la partie 1 que l'orientation d'une fibre dans le repère d'analyse  $(X,Y,Z)$  correspondant à un plan de coupe est décrite par deux angles  $\theta$  et  $\phi$ , qui sont transformés dans le repère d'injection en  $\theta'$  et  $\phi'$  (Eq.1.36). La matrice  $[t_{ij}]$  peut alors être exprimée en fonction de ces deux angles, c'est-à-dire :

$$[t_{ij}] = \begin{bmatrix} \sin \theta' \cos \phi' & \cos \theta' \cos \phi' & -\sin \phi' \\ \sin \theta' \sin \phi' & \cos \theta' \sin \phi' & \cos \phi' \\ \cos \theta' & -\sin \theta' & 0 \end{bmatrix} \quad (2.56)$$

Dans le cas très simple où le plan de coupe est orthogonal à la direction 1,  $[t_{ij}]$  peut s'exprimer en fonction de  $\theta$  et  $\phi$  et l'équation 2.56 devient :

$$[t_{ij}] = \begin{bmatrix} \cos \theta & -\sin \theta & 0 \\ \cos \phi \sin \theta & \cos \phi \cos \theta & -\sin \phi \\ \sin \phi \sin \theta & \sin \phi \cos \theta & \cos \phi \end{bmatrix} \quad (2.57)$$

Pour prendre en compte la contribution de chaque fibre au tenseur effectif de rigidité, on additionne leur composante de sorte que l'équation 2.54 devienne :

$$C_{ijkl} = C^m + \sum_{r=1}^N v_r t_{im} t_{jn} t_{ko} t_{lp} [C^{mnop}] \quad (2.58)$$

avec 
$$C^m = (C^f - C^m) A^{Eshelby} [(1 - v_f) I + v_f A^{Eshelby}]^{-1} \quad (2.59)$$

Il est important de préciser que les règles de transformation des tenseurs d'ordre 4 ne s'appliquent que si la notation à 4 indices est utilisée. Souvent on contracte cette notation à 2 indices, de telle sorte que les tenseurs de rigidité  $C_{ij}$  et de souplesse  $S_{ij}$  s'écrivent sous forme d'une matrice 6x6 et dans ce cas-là, les règles de transformation décrites précédemment ne sont plus valables. Pour transformer des tenseurs d'ordre 4 contractés, il faut revenir à la notation tensorielle  $C_{ijkl}$  et  $S_{ijkl}$ , effectuer le changement de repère, puis repasser à la notation contractée : quand on traite une population de fibres, ces opérations peuvent être lourdes à effectuer.

Une alternative est l'utilisation de la matrice de transformation de Cook [1989], qu'on appelle  $T$ , qui permet de travailler directement avec les tenseurs  $C_{ij}$  (et  $S_{ij}$ ) en notation contractée. On a alors la relation :

$$C_{ij} = {}^t T C_{mn} T \quad (2.60)$$

et

$$T = \begin{bmatrix} l_1^2 & m_1^2 & n_1^2 & l_1 m_1 & m_1 n_1 & n_1 l_1 \\ l_2^2 & m_2^2 & n_2^2 & l_2 m_2 & m_2 n_2 & n_2 l_2 \\ l_3^2 & m_3^2 & n_3^2 & l_3 m_3 & m_3 n_3 & n_3 l_3 \\ 2l_1 l_2 & 2m_1 m_2 & 2n_1 n_2 & (l_1 m_2 + l_2 m_1) & (m_1 n_2 + m_2 n_1) & (n_1 l_2 + n_2 l_1) \\ 2l_2 l_3 & 2m_2 m_3 & 2n_2 n_3 & (l_2 m_3 + l_3 m_2) & (m_2 n_3 + m_3 n_2) & (n_2 l_3 + n_3 l_2) \\ 2l_3 l_1 & 2m_3 m_1 & 2n_3 n_1 & (l_3 m_1 + l_1 m_3) & (m_3 n_1 + m_1 n_3) & (n_3 l_1 + n_1 l_3) \end{bmatrix} \quad (2.61)$$

où  $l_i, m_i, n_i$  sont les cosinus directeurs.

Ils sont définis par :

$${}^t(u_r, u_\theta, u_\varphi) = \begin{bmatrix} l_1 & m_1 & n_1 \\ l_2 & m_2 & n_2 \\ l_3 & m_3 & n_3 \end{bmatrix} {}^t(1, 2, 3) = [b_{ij}] {}^t(1, 2, 3) \quad (2.62)$$

et par rapport à la matrice de passage  $[t_{ij}]$  définie dans l'équation 2.56, on a la relation :

$$[b_{ij}] = {}^t [t_{ij}] \quad (2.63)$$

Finalement, avec la notation à 2 indices, l'équation 2.58 devient :

$$C_{ij} = C^m + \sum_{r=1}^N \nu_r {}^t T [C^r_{mn}] T \quad (2.64)$$

avec

$$C^r_{mn} = (C^f - C^m) A^{Eshelby} [(1 - \nu_f) I + \nu_f A^{Eshelby}]^{-1} \quad (2.65)$$

Bien sûr, le même raisonnement s'applique au tenseur des souplesses et on a  $S = [C]^{-1}$ .

L'inconvénient majeur de cette méthode est qu'elle requiert la fonction de distribution d'orientation si les phases en présence ne sont pas toutes isotropes. Même s'il est possible de la calculer numériquement pour des conditions d'écoulement simples et à partir des équations de rotation d'une fibre, les calculs deviennent très lourds pour des flux tridimensionnels. Quant à sa détermination

expérimentale, on a vu dans la 1<sup>ère</sup> partie qu'elle nécessite de nombreuses étapes, donc qu'il faut un certain temps pour la mesurer.

Afin de distinguer les résultats obtenus par la méthode directe de Mori-Tanaka, on leur ajoutera l'indice  $D-MT$  ; aussi les rigidités prédites d'après l'équation 2.64 seront appelées  $C^{D-MT}$ .

## ii) Procédure en deux étapes

Pour le composite contenant des fibres avec une distribution d'orientation, il est possible de prédire les propriétés élastiques effectives en procédant en deux étapes [Advani et Tucker, 1987], comme indiqué dans le paragraphe 1.2.1-c. Dans ce cas, on considère dans un premier temps un matériau fictif où toutes les fibres sont alignées et les propriétés du composite unidirectionnel sont calculées par la formule de base de Mori-Tanaka [1973]. Pour les rigidités, par exemple, on a (combinaison des équations 2.17 et 2.36) :

$$C^{UD} = C^m + \nu_f (C^f - C^m) : A^{MT} \quad (2.66)$$

où les indices  $f$  et  $m$  se réfèrent à la fibre et à la matrice, respectivement ;  $A^{MT}$  est le tenseur de localisation des déformations et  $\nu_f$  est la fraction volumique de fibres dans le composite réel.

En termes de souplesses, on a une équation similaire :

$$S^{UD} = S^m + \nu_f (S^f - S^m) : B^{MT} \quad (2.67)$$

où  $B^{MT}$  est le tenseur de localisation des contraintes, et les tenseurs  $C^{UD}$  et  $S^{UD}$  sont inverses :

$$S^{UD} = [C^{UD}]^{-1} \quad (2.68)$$

Pour des fibres dont l'axe de symétrie est défini par les angles  $\theta'$  et  $\phi'$  par rapport au repère d'injection (1,2,3), les tenseurs correspondants  $C^{UD}(\theta', \phi')$  et  $S^{UD}(\theta', \phi')$  sont obtenus par un simple opérateur de rotation sur les tenseurs des Eq.2.66 et 2.67, et sont inverses.

Dans un deuxième temps, on incorpore l'orientation des fibres en pondérant les propriétés unidirectionnelles par la fonction de distribution d'orientation  $\psi(\theta', \phi')$  définie dans la partie 1. D'où pour les rigidités :

$$C = \int_{\Omega} C^{UD}(\theta', \phi') \psi(\theta', \phi') d\Omega \quad (2.45)$$

où  $\Omega$  est une sphère unitaire,  $d\Omega = \sin \theta' d\theta' d\phi'$  et  $\int_{\Omega} \psi(\theta', \phi') d\Omega = 1$ .

De la même manière pour les souplesses, on a :

$$S = \int_{\Omega} S^{UD}(\theta', \phi') \psi(\theta', \phi') d\Omega \quad (2.69)$$

On peut noter que lorsqu'on considère le matériau unidirectionnel fictif (Eq.2.66 et 2.67), la fraction volumique de fibres considérée est la fraction totale du composite désorienté : cette condition entraîne un composite unidirectionnel trop rigide, mais ceci est équilibré par le fait qu'on pondère  $C^{UD}(\theta', \phi')$  et  $S^{UD}(\theta', \phi')$  par  $\psi(\theta', \phi')$ .

L'inconvénient de cette approche, appliquée récemment par Pierard et al. [2004], est qu'elle nécessite la fonction de distribution d'orientation, longue à obtenir expérimentalement. Une description simplifiée de l'état d'orientation est préférée par les auteurs, notamment en utilisant les tenseurs d'orientation.

Si le composite unidirectionnel fictif est isotrope transverse (c'est le cas de notre composite puisque les deux phases sont isotropes), alors ses propriétés représentées par des tenseurs Q d'ordre 4 symétriques, tels que  $Q_{ijkl} = Q_{jikl} = Q_{ijlk} = Q_{klij}$ , peuvent s'écrire comme la somme de 5 termes [Advani et Tucker, 1987]. C'est le cas des tenseurs d'élasticité et en particulier pour le tenseur des rigidités, on doit avoir :

$$C_{ijkl}^{UD}(\theta', \phi') = C_1 (p_i p_j p_k p_l) + C_2 (p_i p_j \delta_{kl} + p_k p_l \delta_{ij}) + C_3 (p_i p_k \delta_{jl} + p_i p_l \delta_{jk} + p_j p_l \delta_{ik} + p_j p_k \delta_{il}) + C_4 \delta_{ij} \delta_{kl} + C_5 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \quad (2.70)$$

où  $\delta_{ij}$  est le symbole de Kronecker et les cinq constantes  $C_i$  sont calculées à partir des 5 constantes indépendantes caractérisant le comportement isotrope transverse du composite unidirectionnel.

Si on considère la direction 1 comme axe de symétrie, on a :

$$\begin{cases} C_1 = C_{3333}^{UD} - 2 C_{3322}^{UD} + C_{2211}^{UD} - 4 C_{3232}^{UD} + 2 C_{2121}^{UD} \\ C_2 = C_{3322}^{UD} - C_{2211}^{UD} \\ C_3 = C_{3232}^{UD} - C_{2121}^{UD} \\ C_4 = C_{2211}^{UD} \\ C_5 = C_{2121}^{UD} \end{cases} \quad (2.71)$$

Par conséquent, l'opération de moyenne (Eq.2.45) devient :

$$C_{ijkl} = \int_{\Omega} [C_1 (p_i p_j p_k p_l) + C_2 (p_i p_j \delta_{kl} + p_k p_l \delta_{ij}) + C_3 (p_i p_k \delta_{jl} + p_i p_l \delta_{jk} + p_j p_l \delta_{ik} + p_j p_k \delta_{il}) + C_4 \delta_{ij} \delta_{kl} + C_5 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk})] \psi(\theta', \phi') d\Omega \quad (2.72)$$

d'où l'Eq.2.46 précédemment citée.

De la même manière, on peut moyenner le tenseur des souplesses du composite unidirectionnel caractérisé par 5 constantes  $S_1, \dots, S_5$  :

$$S_{ijkl}^{UD}(\theta', \phi') = S_1 (p_i p_j p_k p_l) + S_2 (p_i p_j \delta_{kl} + p_k p_l \delta_{ij}) + S_3 (p_i p_k \delta_{jl} + p_i p_l \delta_{jk} + p_j p_l \delta_{ik} + p_j p_k \delta_{il}) + S_4 \delta_{ij} \delta_{kl} + S_5 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \quad (2.73)$$

ce qui conduit au tenseur des souplesses homogénéisé :

$$S_{ijkl} = \int_{\Omega} S_{ijkl}^{UD}(\theta', \phi') \psi(\theta', \phi') d\Omega = S_1 a_{ijkl} + S_2 (a_{ij} \delta_{kl} + a_{kl} \delta_{ij}) + S_3 (a_{ik} \delta_{jl} + a_{il} \delta_{jk} + a_{jl} \delta_{ik} + a_{jk} \delta_{il}) + S_4 \delta_{ij} \delta_{kl} + S_5 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \quad (2.74)$$

Il est important de noter que les tenseurs de rigidité et de souplesse du composite unidirectionnel sont inverses (Eq.2.68), alors que les tenseurs élastiques du composite ne le sont plus ; ceci est une limite propre à la procédure en deux étapes.

Plusieurs auteurs [Advani et Tucker, 1987 ; Gupta et Wang, 1993 ; Mlekusch, 1999] recommandent de moyenner les rigidités (Eq.2.46) plutôt que les souplesses (Eq.2.74), parce que les prédictions obtenues sont plus proches des mesures expérimentales. Cependant, leur analyse est uniquement basée sur des comparaisons entre des mesures et des prédictions de modules d'élasticité, sans considérer les coefficients de dilatation ; dans notre cas, les propriétés élastiques et les coefficients de dilatation seront étudiés, donc on prendra en considération les deux approches.

On remarque que le tenseur d'orientation d'ordre 4 est nécessaire dans les équations Eq.2.46 et Eq.2.74, alors que les codes commerciaux de simulation ne fournissent en général que le tenseur d'ordre 2. Il faut alors estimer des tenseurs d'ordre 4 à partir de ceux d'ordre 2 via des hypothèses : ce sont les équations de fermeture.

## Equations de fermeture

Plusieurs hypothèses de fermeture ont été proposées, comme l'équation linéaire, l'équation quadratique ou l'équation hybride, que nous détaillons ci-dessous. Bien sûr, il en existe d'autres, mais notre but n'est pas de tester toutes les approximations ; nous avons préféré travailler avec un nombre non exhaustif d'hypothèses pour voir comment elles influencent les résultats en élasticité.

Elles sont définies comme suit :

- l'équation linéaire, qui est exacte pour une distribution d'orientation de fibres complètement isotrope, est donnée par:

$$a_{ijkl}^L = -\frac{1}{35}(\delta_{ij}\delta_{kl} + \delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}) + \frac{1}{7}(a_{ij}\delta_{kl} + a_{ik}\delta_{jl} + a_{il}\delta_{jk} + a_{kl}\delta_{ij} + a_{jl}\delta_{ik} + a_{jk}\delta_{il}) \quad (2.75)$$

- l'équation quadratique, qui est exacte pour des fibres parfaitement alignées, est définie par :

$$a_{ijkl}^Q = a_{ij} a_{kl} \quad (2.76)$$

- l'équation hybride, qui est un intermédiaire entre les équations linéaire et quadratique, pondérées par un coefficient  $0 \leq f \leq 1$ , est donnée par :

$$a_{ijkl}^H = (1-f)a_{ijkl}^L + f a_{ijkl}^Q \quad (2.77)$$

Deux expressions pour la fonction  $f$  ont été suggérées par Advani et Tucker [1987 ; 1990], telles que  $f = 1$  pour des fibres parfaitement alignées,  $f = 0$  pour une distribution complètement isotrope et  $f = -0.5$  pour des fibres alignées perpendiculairement à la direction de référence :

$$f = \frac{3}{2} a_{ij} a_{ij} - \frac{1}{2} \quad \text{ou} \quad f = 1 - 27 \det(a_{ij}) \quad (2.78)$$

où  $\det(a_{ij})$  indique le déterminant du tenseur  $a_{ij}$ .

Dans le cas où la distribution d'orientation est bidimensionnelle, des variantes ont été développées [Advani et Tucker, 1987, 1990] : pour l'équation linéaire, les coefficients 1/35 et 1/7 (Eq.2.75) sont remplacés par 1/24 et 1/6, respectivement ; pour l'équation hybride, le facteur de pondération devient :

$$f = 2 a_{ij} a_{ij} - 1 \quad \text{ou} \quad f = 1 - 4 \det(a_{ij}) \quad (2.79)$$

On a montré dans la partie 1 que la distribution d'orientation des fibres de nos composites injectés n'est pas strictement dans un plan : nous allons donc nous concentrer sur les versions tridimensionnelles des équations de fermeture (Eq.2.75 à 2.78). Pour cette même raison, l'équation naturelle de Verleye et Dupret [1993] ne sera pas étudiée, puisque des expressions analytiques ne sont données que dans le cas bidimensionnel.

Pour les trois équations de fermeture considérées (Linéaire, Quadratique et Hybride), on remarquera que les propriétés des tenseurs d'ordre 4 sont respectées, à savoir  $a_{.ijj} = 1$  et  $a_{.ijj} = 1$  (où la répétition de l'indice indique une sommation, Eq.1.20) et  $a_{ijkk} = a_{ij}$  (Eq.1.21) ; en revanche, seule l'équation linéaire est invariante quand on permute les 4 indices  $(i, j, k, l)$ , c'est-à-dire qu'elle est la seule à posséder 13 composantes indépendantes : on voit ici un défaut des équations quadratique et hybride. Ces observations sont valables pour les variantes tri- et bi-dimensionnelles des équations de fermeture.

### iii) Synthèse

Le modèle de Mori-Tanaka est utilisé pour estimer les propriétés élastiques de nos composites. Les deux phases étant isotropes, nous n'avons aucun souci quant à la symétrie des tenseurs élastiques effectifs et ces derniers sont indépendants des propriétés de la matrice si on considère un cas limite où le taux de fibres tend vers 1.

Une première évaluation du tenseur de rigidité, qu'on appellera  $C^{D-MT}$ , va être obtenue par la méthode directe de Mori-Tanaka (Eq.2.64). L'inconvénient majeur de cette approche est qu'elle nécessite la fonction de distribution d'orientation des fibres si toutes les phases du composite ne sont pas isotropes : dans notre étude, où les deux phases sont isotropes, nous l'avons mesurée expérimentalement dans la partie 1, mais il n'est pas évident de l'obtenir autrement (par exemple par les logiciels de simulation).

Huit autres évaluations vont être obtenues par la procédure en deux étapes : 4 sont obtenues en moyennant les tenseurs de rigidités, qu'on appellera  $C^{SA}$ , et 4 autres en moyennant les tenseurs de souplesses et en prenant leurs inverses, qu'on appellera  $C^{CA} = [S^{CA}]^{-1}$ . Dans chaque cas, les 4 estimations sont obtenues en utilisant les 4 équations de fermeture considérées : linéaire (Eq.2.75), quadratique (Eq.2.76), hybride (Eq.2.77) de type A (terme de gauche de l'Eq.2.78) et hybride de type B (terme de droite de l'Eq.2.78). Les limites de la procédure en deux étapes sont d'une part, le fait que les tenseurs de souplesse et de rigidité ne sont pas inverses ( $C^{SA} \neq [S^{CA}]^{-1}$ ) ; d'autre part, qu'une évaluation du tenseur d'ordre 4 est nécessaire à partir du tenseur d'ordre 2.

Au total, 9 évaluations des tenseurs élastiques (rigidité et souplesse) seront obtenues et vont être comparées.

On peut préciser néanmoins que la procédure en deux étapes est plus flexible que la méthode directe, dans le cas d'un biphasé et quand une distribution d'orientation est considérée. En effet, dans ces conditions, les tenseurs effectifs obtenus avec la méthode directe ne sont garantis symétriques que si les renforts sont isotropes [Benveniste, 1991] ; donc le modèle n'est pas applicable par exemple pour des fibres de carbone, isotropes transverses. Avec la procédure en deux étapes, les tenseurs effectifs sont garantis symétriques si ceux du composite unidirectionnel le sont : or pour une biphasé



unidirectionnel, les tenseurs sont toujours symétriques, donc la méthode est applicable quel que soit le type de renforts et en l'occurrence pour les fibres de carbone.

Si il y a plus de deux phases de matériaux différents en présence et toujours une distribution d'orientation, la méthode en deux étapes n'est bien entendu applicable que si le composite unidirectionnel est isotrope transverse, et si la distribution d'orientation est la même pour les différents renforts. Ce cas est peu réaliste d'un point de vue expérimental.

#### d) Les modèles utilisés en thermo-élasticité

Notre composite étant un biphase, l'équation de Levin [1967] est particulièrement adaptée pour déterminer les coefficients de dilatation à partir des modules élastiques effectifs. Les résultats sont obtenus à partir des expressions générales  $\kappa = \langle {}^t A : \kappa \rangle$  et  $\alpha = \langle {}^t B : \alpha \rangle$  (Eq.2.48 et 2.50) et les tenseurs de localisation  $A$  et  $B$  sont éliminés en utilisant les équations 2.22, 2.23 et 2.11, c'est-à-dire le fait que  $\langle A \rangle = I$  et  $C = \langle C : A \rangle$  d'une part, et que  $\langle B \rangle = I$  et  $S = \langle S : B \rangle$  d'autre part.

Il en résulte que quand le tenseur effectif de rigidité  $C$  est connu, l'Eq.2.48 devient [Levin, 1967] :

$$\kappa = (C^f - C) : (C^f - C^m)^{-1} : \kappa^m + (C^m - C) : (C^m - C^f)^{-1} : \kappa^f \quad (2.80)$$

et quand les souplesses  $S$  sont connues, l'Eq.2.50 devient :

$$\alpha = (S^f - S) : (S^f - S^m)^{-1} : \alpha^m + (S^m - S) : (S^m - S^f)^{-1} : \alpha^f \quad (2.81)$$

où les indices  $f$  et  $m$  sont relatifs à la fibre et à la matrice.

Cela signifie que le tenseur des contraintes thermiques  $\kappa$  (et des coefficients de dilatation  $\alpha$ ) est évalué directement à partir de l'estimation du tenseur des rigidités (et des souplesses) et des propriétés de chaque phase.

Généralement, les deux expressions (Eq.2.80 et 2.81) sont équivalentes avec  $\kappa = C : \alpha$  et  $C = S^{-1} :$  c'est le cas quand on utilise la méthode directe de Mori-Tanaka, mais avec la procédure en 2 étapes, l'équation 2.80 combinée avec  $\alpha = C^{-1} : \kappa$  et l'équation 2.81 procurent deux évaluations différentes du tenseur des dilatations, car les tenseurs de souplesse et de rigidité ne sont pas inverses ( $C^{SA} \neq [S^{CA}]^{-1}$ ). Il en résulte qu'on devrait obtenir une évaluation du tenseur des dilatations à partir des propriétés élastiques prédites par la méthode directe de Mori-Tanaka et indifféremment l'Eq.2.80 ou 2.81 ; 4 évaluations en moyennant les rigidités (avec les 4 équations de fermeture) et en utilisant l'Eq.2.80 ; et 4 autres en moyennant les souplesses et en utilisant l'Eq.2.81 ; soit au total 9 évaluations.

Mais si les coefficients de dilatation sont estimés à partir de l'Eq.2.81, on constate que le tenseur des souplesses  $S$  (anisotrope dans un cas général) est contracté par le tenseur  $(\mathbf{S}^f - \mathbf{S}^m)^{-1} : (\boldsymbol{\alpha}^f - \boldsymbol{\alpha}^m)$ , qui est un tenseur du 2<sup>nd</sup> ordre isotrope, puisque les deux phases matrice et fibre sont isotropes. Or tout tenseur isotrope d'ordre 2 est proportionnel au tenseur identité  $\delta_{ij}$  d'ordre 2, donc on a :

$$S : (S^f - S^m)^{-1} : (\boldsymbol{\alpha}^f - \boldsymbol{\alpha}^m) \propto S_{ijkl} \delta_{kl} \quad (2.82)$$

et si les souplesses sont estimées par la procédure en 2 étapes (Eq.2.74) :

$$\begin{aligned} S_{ijkl} \delta_{kl} = & S_1 a_{ijkl} \delta_{kl} + S_2 (a_{ij} \delta_{kl} + a_{kl} \delta_{ij}) \delta_{kl} + S_3 (a_{ik} \delta_{jl} + a_{il} \delta_{jk} + a_{jl} \delta_{ik} + a_{jk} \delta_{il}) \delta_{kl} \\ & + S_4 \delta_{ij} \delta_{kl} \delta_{kl} + S_5 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \delta_{kl} \end{aligned} \quad (2.83)$$

En utilisant le fait que  $a_{ijkk} = a_{ij}$  (Eq.1.21), l'équation précédente se réduit à :

$$S_{ijkl} \delta_{kl} = (S_1 + 3 S_2 + 4 S_3) a_{ij} + (S_2 + 3 S_4 + 2 S_5) \delta_{ij} \quad (2.84)$$

Par conséquent, les coefficients de dilatation obtenus en moyennant les souplesses et en utilisant l'équation de Levin 2.81 ne dépendent que du tenseur d'orientation d'ordre 2 et sont indépendants de l'hypothèse de fermeture considérée pour évaluer  $S$ .

Le même raisonnement s'applique pour le tenseur des contraintes thermiques  $\boldsymbol{\kappa}$  (Eq.2.80), qui s'avère indépendant de  $a_{ijkl}$ , mais comme les coefficients de dilatation sont déduits par  $\boldsymbol{\alpha} = \mathbf{C}^{-1} : \boldsymbol{\kappa}$ , l'effet du tenseur d'orientation d'ordre 4 est réintroduit via son influence sur les rigidités effectives  $C$ .

Enfin, une autre méthode pour obtenir les coefficients de dilatation peut être citée. Sur le même principe qu'en élasticité, on peut calculer les dilatations  $\boldsymbol{\alpha}^{UD}$  d'un composite unidirectionnel fictif et faire une moyenne sur toutes les directions :

$$\boldsymbol{\alpha} = \int_{\Omega} \boldsymbol{\alpha}^{UD}(\theta', \phi') \psi(\theta', \phi') d\Omega \quad (2.85)$$

$\boldsymbol{\alpha}^{UD}$  étant isotrope transverse, ce tenseur d'ordre 2 peut s'écrire sous la forme :

$$\boldsymbol{\alpha}^{UD}_{ij} = K_1 p_i p_j + K_2 \delta_{ij} \quad (2.86)$$

où  $K_1, K_2$  sont les deux constantes indépendantes du tenseur isotrope transverse  $\boldsymbol{\alpha}^{UD}$ . D'après l'équation 2.85, on obtient :

$$\boldsymbol{\alpha}_{ij} = K_1 a_{ij} + K_2 \delta_{ij} \quad (2.87)$$

En appliquant l'équation de Levin, cela revient à calculer :

$$\boldsymbol{\alpha}^{UD} = (\mathbf{S}^f - \mathbf{S}^{UD}) : (\mathbf{S}^f - \mathbf{S}^m)^{-1} : \boldsymbol{\alpha}^m + (\mathbf{S}^m - \mathbf{S}^{UD}) : (\mathbf{S}^m - \mathbf{S}^f)^{-1} : \boldsymbol{\alpha}^f \quad (2.88)$$

et 
$$\boldsymbol{\kappa}^{UD} = (\mathbf{C}^f - \mathbf{C}^{UD}) : (\mathbf{C}^f - \mathbf{C}^m)^{-1} : \boldsymbol{\kappa}^m + (\mathbf{C}^m - \mathbf{C}^{UD}) : (\mathbf{C}^m - \mathbf{C}^f)^{-1} : \boldsymbol{\kappa}^f \quad (2.89)$$

qui sont équivalentes en prenant  $\boldsymbol{\kappa}^{UD} = \mathbf{C}^{UD} : \boldsymbol{\alpha}^{UD}$ , puisque  $\mathbf{C}^{UD} = [\mathbf{S}^{UD}]^{-1}$ . Mais comme l'Eq.2.88 est linéaire par rapport à  $\mathbf{S}^{UD}$  et comme on a fait l'hypothèse que les deux phases en présence sont isotropes, alors moyenner  $\boldsymbol{\alpha}^{UD}$  se limite à moyenner  $\mathbf{S}^{UD}$  dans Eq.2.88, et ceci revient exactement au résultat de l'Eq.2.81. Les mêmes commentaires s'appliquent à l'équation 2.89, qui une fois moyennée est équivalente à l'Eq.2.80. On en déduit que cette méthode n'apporte pas de nouveaux résultats dans notre cas.

### Synthèse

Un diagramme récapitulatif, regroupant les 9 façons d'évaluer les propriétés élastiques et les différentes façons d'estimer les coefficients de dilatation, est représenté sur la figure 2.3.

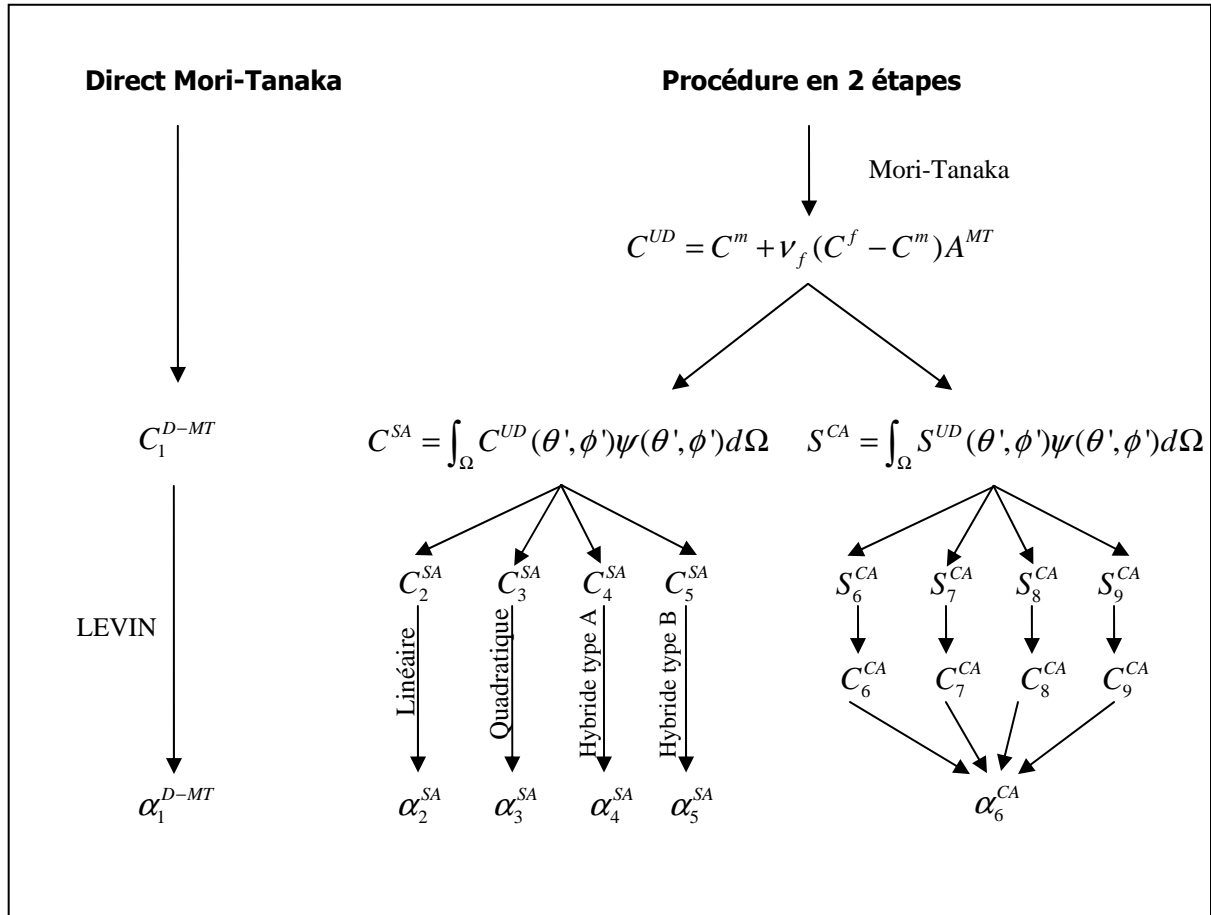


Figure 2.3 : modèles développés en thermo-élasticité

Finalement, parmi les 9 évaluations possibles des coefficients de dilatation, six seulement sont différentes : ainsi, on obtiendra une évaluation à partir de la méthode directe de Mori-Tanaka ; une évaluation indépendante de  $a_{ijkl}$  en moyennant les tenseurs de souplesse et 4 évaluations en fonction des 4 équations de fermeture en moyennant les rigidités.

Afin de valider ou au contraire de réfuter ces différentes évaluations, elles doivent être comparées à des données expérimentales et la caractérisation des composites injectés est précisément l'objet du prochain paragraphe.

## **2. CARACTERISATION THERMO-MECANIQUE : ESSAIS ET MESURES**

La confrontation des prédictions avec l'expérience est une étape indispensable à la validation des modèles. Dans cette partie, nous allons d'abord caractériser les constituants en fonction de la température et les résultats seront utilisés comme données d'entrée dans nos modèles ; puis nous mesurerons les propriétés macroscopiques des composites injectés, qui pourront être comparées aux données de sortie de nos modèles.

### **2.1 Essais thermo-mécaniques**

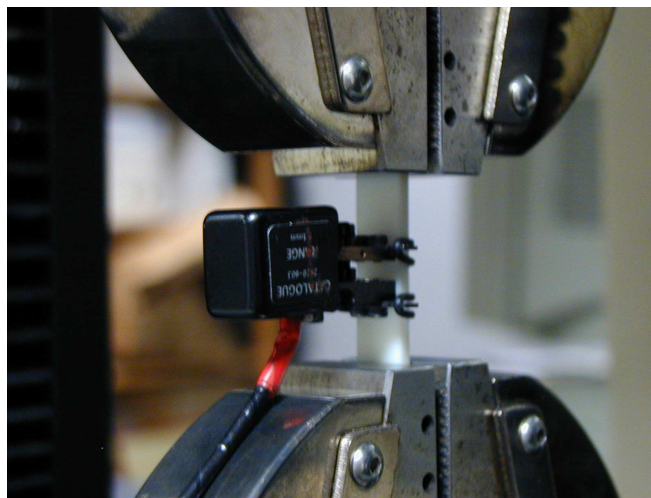
Un certain nombre d'essais ont été réalisés afin de mesurer les propriétés thermo-mécaniques des matériaux. En particulier, les modules d'Young, les coefficients de Poisson et les coefficients de dilatation sont les paramètres qui nous intéressent.

#### **a) Essais de traction**

Afin de mesurer les modules d'Young, des essais de traction uniaxiale sont réalisés sur différentes éprouvettes. La machine de traction utilisée est une INSTRON 4502 reliée à un PC pour l'acquisition des données. Les cellules de force disponibles sont de 1kN et 10kN ; pour des raisons techniques, seule la cellule de 10kN a été utilisée. On dispose également d'un extensomètre mécanique INSTRON (Figure 2.4), d'ouverture 10 mm et de débattement  $\pm 1$  mm, qui se place sur l'éprouvette par deux lames maintenues par des élastiques.

Lors d'un essai de traction, la géométrie de l'éprouvette est un paramètre très influent sur les résultats : toutes les éprouvettes auront alors la même géométrie, déterminée selon les normes. On choisit une forme rectangulaire comme l'éprouvette de type 2 de la norme *NF EN ISO 527-3*, mais de la longueur

de la plaque, soit 60 mm. Sa largeur sera de 10 mm, comme dans les normes : cette largeur sera suffisante pour une mesure des modules avec un extensomètre mécanique. Pour la découpe des éprouvettes, un pré-découpage est réalisé à la scie à ruban et la largeur est usinée par fraisage en bout, pour atteindre les 10 mm ; ce procédé assure en plus le parallélisme des faces opposées. Pour ne pas dégrader le matériau, on limite l'échauffement en fixant une profondeur de passe maximum à 0.4 mm pour une vitesse d'avance de 50 mm/mn ( $V_a = 0.016$  mm/tr/dent) et une vitesse de rotation de 320 tr/mn ( $V_c = 80$  m/mn). Un usinage dans ces conditions sur nos polymères a donné une température mesurée de 45°C: le matériau ayant une température de transition vitreuse de 85°C, on peut donc affirmer que l'échauffement dû au fraisage n'entraîne pas de modification de la structure du matériau. Les essais sont alors réalisés sur ces éprouvettes.



**Figure 2.4** : extensomètre en position

La norme fixe une vitesse de traction donnant un taux de déformation le plus proche de 1% de la longueur de référence par minute : la vitesse la plus proche conseillée par la norme, et qu'on a adoptée, est de 1mm/min. Sachant que la longueur de l'éprouvette entre les mors est de 35 mm environ, la vitesse de déformation imposée est de l'ordre de  $0.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ .

L'éprouvette est déformée dans le domaine élastique (déformation maximale de 0.4%) et l'effort ainsi que la déformation mesurée par l'extensomètre sont enregistrés pendant l'essai ; la contrainte est alors représentée en fonction de la déformation. Le calcul du module élastique s'effectue par le logiciel, d'après la relation :

$$E = \frac{\sigma_2 - \sigma_1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \quad (2.90)$$

sachant que la norme spécifie que le module doit être mesuré entre  $\varepsilon_1 = 0.05\%$  et  $\varepsilon_2 = 0.25\%$  de déformation ;  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  représentant les contraintes pour les déformations  $\varepsilon_1$  et  $\varepsilon_2$ , respectivement.

Pour avoir un résultat correct, la norme préconise plus de 5 éprouvettes pour le même essai ; 5 à 7 éprouvettes ont été utilisées. Les essais sont réalisés dans les directions longitudinale (direction 1) et transversale (direction 2) ; en revanche, ils ne peuvent être effectués dans la direction 3, puisque l'épaisseur des plaques est trop faible (elle varie entre 1 mm et 3 mm).

Les essais peuvent être réalisés à température ambiante, mais aussi à plus haute température en plaçant l'ensemble mords, éprouvette et extensomètre dans une enceinte régulée. Les essais sont réalisés à température ambiante et pour les composites injectés, ils sont aussi réalisés à  $T > T_g$ , soit à  $T = 120^\circ\text{C}$ .

## b) Essais de rhéologie

Afin de mesurer la variation des modules en fonction de la température, des essais dynamiques ont été réalisés sur un torsiomètre (RDA III *Rheometric Scientific*). Pour des matériaux visco-élastiques, le module est une fonction complexe comprenant une partie élastique et une partie visqueuse : la contribution élastique est représentée par la partie réelle  $G'$  de ce module complexe et la contribution visqueuse par la partie imaginaire  $G''$ .

Si on impose à de tels matériaux une petite déformation sinusoïdale de la forme :

$$\gamma = \gamma_0 \exp(i\omega t) \quad (2.91)$$

la contrainte  $\tau$  mesurée sera aussi sinusoïdale, avec un retard de phase  $\delta$  :

$$\tau = \tau_0 \exp(i\omega t + \delta) \quad (2.92)$$

A partir de la mesure de la contrainte  $\tau_0$  et du retard de phase  $\delta$ , on obtient les modules  $G'$  et  $G''$  :

$$G' = \frac{\tau_0}{\gamma_0} \cos \delta \quad \text{et} \quad G'' = \frac{\tau_0}{\gamma_0} \sin \delta \quad (2.93)$$

L'essai dynamique peut être réalisé à une fréquence donnée sur un domaine large de températures, à condition de rester dans le domaine de la viscoélasticité linéaire, c'est-à-dire d'un point de vue pratique, obtenir des mesures de  $G'$  et  $G''$  indépendantes de la déformation imposée.

Les mêmes éprouvettes rectangulaires utilisées dans les essais de traction sont utilisées avec le torsiomètre. Les essais sont réalisés à une fréquence de 1Hz, pour une déformation qui varie de 0.1% à température ambiante à 1% à  $220^\circ\text{C}$ . La gamme de température balayée varie de l'ambiante à  $220^\circ\text{C}$ . On opte pour une vitesse de chauffe de 5K/min.

### c) Données PVT (Pression – Volume spécifique – Température)

La détermination du coefficient de Poisson n'est pas facilement réalisable avec beaucoup de précision, mais sachant que le module d'Young  $E$ , le module de compressibilité  $K$  et le coefficient de Poisson  $\nu$  d'un matériau isotrope sont reliés par la relation :

$$K = \frac{E}{3(1 - 2\nu)} \quad (2.94)$$

il est plus judicieux de déterminer le module de compressibilité.

Les diagrammes PVT (Pression-Volume-Température) sont utiles, car ils permettent de déterminer le module de compressibilité  $K$ , d'après :

$$K = -\frac{\partial P}{\partial V / V} \quad (2.95)$$

En général, la variation du volume spécifique peut être modélisée par une loi de Tait [Tait, 1888] qui se définit comme suit [Van Krevelen, 1976 ; Deterre, 1984] :

$$V(T, P) = V_0(T) \left[ 1 - C \ln\left(1 + \frac{P}{B(T)}\right) \right] + V_i(T, P) \quad (2.96)$$

où  $T$  est la température en Kelvin,  $P$  la pression en Pa et  $C$  une constante égale à 0.0894.

Ce modèle décrit en fait deux domaines :

- le domaine des hautes températures ( $T > T_{trans}$ ), défini par 
$$\begin{cases} V_0 = b_{1m} + b_{2m}(T - b_5) \\ B(T) = b_{3m} \exp[-b_{4m}(T - b_5)] \end{cases} \quad (2.97)$$

- et le domaine des basses températures ( $T < T_{trans}$ ), défini par 
$$\begin{cases} V_0 = b_{1s} + b_{2s}(T - b_5) \\ B(T) = b_{3s} \exp[-b_{4s}(T - b_5)] \end{cases} \quad (2.98)$$

$b_5$  est la température de transition  $T_{trans}$  à pression nulle ; suivant les cas, elle représente soit la température de transition vitreuse, soit la température de cristallisation.  $b_6$  représente l'accroissement de  $T_{trans}$  avec la pression. Ces paramètres sont évalués en déterminant l'effet de la pression sur la température de transition :  $T_{trans}(P) = b_5 + b_6 P$ .

On peut préciser que la région des hautes températures est décrite par une variation linéaire du volume spécifique avec la température ( $V_i(T, P) = 0$ ) ; en revanche pour les matériaux cristallins (non-amorphes), une fonction supplémentaire est nécessaire pour décrire la variation du volume spécifique engendrée par la cristallisation :

$$V_r(T, P) = b_7 \exp[b_8(T - b_5) - b_9P] \quad (2.99)$$

Dès lors que les paramètres du modèle sont fixés (par exemple, par ajustement avec les courbes expérimentales), il est possible d'extrapoler le modèle à la pression de 0 bar et le module de compressibilité  $K$  peut être obtenu en fonction de la température (à pression atmosphérique), d'après :

$$K = - \left. \frac{\partial P}{\partial V / V} \right|_{P=0} = - \left. \frac{b_7 \exp[b_8(T - b_5) - b_9P] + V_0(1 - C \ln(1 + P/B))}{-b_7 b_9 \exp[b_8(T - b_5) - b_9P] - CV_0 / [B(1 + P/B)]} \right|_{P=0} \quad (2.100)$$

soit

$$K(T) \Big|_{P=0} = \frac{b_7 \exp[b_8(T - b_5)] + V_0}{b_7 b_9 \exp[b_8(T - b_5)] + CV_0 / B} \quad (2.101)$$

Les diagrammes PVT sont réalisés par le laboratoire LMPB de l'université Claude Bernard de Lyon. Les expériences sont menées 3 fois en mode de refroidissement isobare et sous différentes pressions : 200, 600 et 1000 bar. Les résultats bruts sont analysés et une bonne reproductibilité apparaît.

Les résultats expérimentaux sont confirmés par des mesures de densité. En effet, durant l'expérimentation des fuites peuvent apparaître, si bien que la masse d'échantillon analysé peut être faussée et que les courbes PVT peuvent être déplacées verticalement. Pour remédier à ce défaut, les courbes sont ajustées par la vraie valeur de densité à température ambiante et pression atmosphérique.

#### d) Dilatométrie

Pour déterminer les coefficients de dilatation des matériaux étudiés, des échantillons sont soumis à un cycle thermique et la mesure de la déformation dans une direction  $i$  d'origine thermique est réalisée par l'utilisation du dilatomètre TMA-202 de *Netzsch*. Les coefficients de dilatation linéaires sont obtenus en évaluant la dérivée des courbes déformation-température. En effet, le coefficient linéaire dans la direction  $i$  est défini par :

$$\alpha_i(T) = \frac{1}{l_0} \left( \frac{\partial l}{\partial T} \right)_P \quad (2.102)$$

où  $l_0$  est la longueur initiale de l'échantillon.

Trois échantillons sont testés dans chaque direction afin de tester la fiabilité et la reproductibilité des résultats. Les échantillons mesurés sont de petite taille (typiquement 10 mm de longueur) ; il est donc possible de mesurer les coefficients de dilatation dans les trois directions principales. Quand on étudie la direction normale (axe 3), on découpe des cubes dont le côté est égal à l'épaisseur de la plaque.



L'échantillon est soumis à un cycle thermique qui se compose d'une chauffe, d'un refroidissement et d'une seconde chauffe, où la température varie de  $-10^{\circ}\text{C}$  à  $200^{\circ}\text{C}$ , à raison de  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ . La descente en température jusqu'à  $-10^{\circ}\text{C}$  est permise grâce à l'utilisation d'azote liquide. L'intérêt de faire deux chauffés successives est de pouvoir mettre en évidence, s'il y en a, les relaxations de contraintes ou une éventuelle post-cristallisation.

## 2.2 Propriétés des constituants

### a) Propriétés des fibres

Les fibres de verre utilisées sont des fibres courtes d'une longueur moyenne de  $250\mu\text{m}$  et de diamètre  $10\mu\text{m}$  : il en résulte un rapport de forme de 25. Il s'agit de verre de type E. On considère que les propriétés de la fibre sont indépendantes de la température et on utilise les données des fournisseurs (Solvay) à température ambiante (Tableau 1.1) :  $E^f = 74\text{GPa}$ ,  $\nu_f = 0.25$  et  $\alpha^f = 5.10^{-6} \text{K}^{-1}$ .

Le matériau est considéré isotrope et par conséquent le tenseur des souplesses de la fibre  $S^f$  est :

$$S^f = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{12} & S_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} \end{bmatrix} \text{ avec } \begin{cases} S_{11} = \frac{1}{E^f} \\ S_{12} = -\frac{\nu_f}{E^f} \\ S_{44} = 2(S_{11} - S_{22}) \end{cases} \quad (2.103)$$

et le tenseur des rigidités de la fibre  $C^f$  est obtenu par :

$$C^f = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{bmatrix} \text{ avec } \begin{cases} C_{11} = \frac{E^f(1-\nu_f)}{(1-2\nu_f)(1+\nu_f)} \\ C_{12} = \frac{E^f\nu_f}{(1-2\nu_f)(1+\nu_f)} \\ C_{44} = \frac{C_{11}-C_{22}}{2} \end{cases} \quad (2.104)$$

Bien sûr ces deux tenseurs sont inverses tel que  $S^f = [C^f]^{-1}$ .

Le tenseur des dilatations est lui défini par 
$$[\alpha^f] = \begin{bmatrix} \alpha^f & 0 & 0 \\ 0 & \alpha^f & 0 \\ 0 & 0 & \alpha^f \end{bmatrix} \quad (2.105)$$

## b) Propriétés thermo-élastiques de la matrice

La matrice pure (grade 6002, sans fibre) a été injectée sous forme de plaques de 3 mm d'épaisseur et est étudiée ici. On considère que le matériau de faible masse molaire est isotrope, donc les mesures ne nécessitent d'être réalisées que dans une direction.

### Caractérisation élastique

Des essais de traction ont été menés à température ambiante (23°C) et à 100°C (>T<sub>g</sub>). Les courbes correspondantes, ainsi que les mesures de modules sont regroupées dans l'annexe 2. Il apparaît une valeur moyenne du module d'Young égale à 5.1GPa à température ambiante : cette valeur est bien supérieure à la valeur de 4GPa donnée par les fournisseurs ; pourtant on conservera les mesures expérimentales comme référence. A 100°C, le module élastique chute logiquement et a une valeur moyenne de 0.87GPa.

Les essais dynamiques ont été réalisés sur des éprouvettes de matrice injectée. Les modules G', G'' et l'angle δ ont été mesurés en fonction de la température et les graphes correspondants se trouvent sur la figure 2.5.

On suppose que les variations de G' avec la température représentent celles du module de rigidité G de la matrice en fonction de la température. La mesure en dynamique des modules est précise en relatif mais pas en absolu, il faut donc recalibrer les mesures par une mesure statique de G. Pour un matériau isotrope, on a la relation :

$$G = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (2.106)$$

On sait qu'à température ambiante,  $E^m = 5.1GPa$  et  $\nu_m = 0.38$  (calculé à partir de l'Eq. 2.107, de  $K^m$  et  $E^m$ ), donc à 23°C on doit avoir  $G = 5.1 / [2(1+0.38)] = 1.85GPa$ . Cette valeur nous permet d'obtenir les valeurs de G en fonction de la température, en appliquant un coefficient correcteur sur la courbe expérimentale de G' telle qu'elle passe par 1.85GPa à 23°C (Figure 2.5).

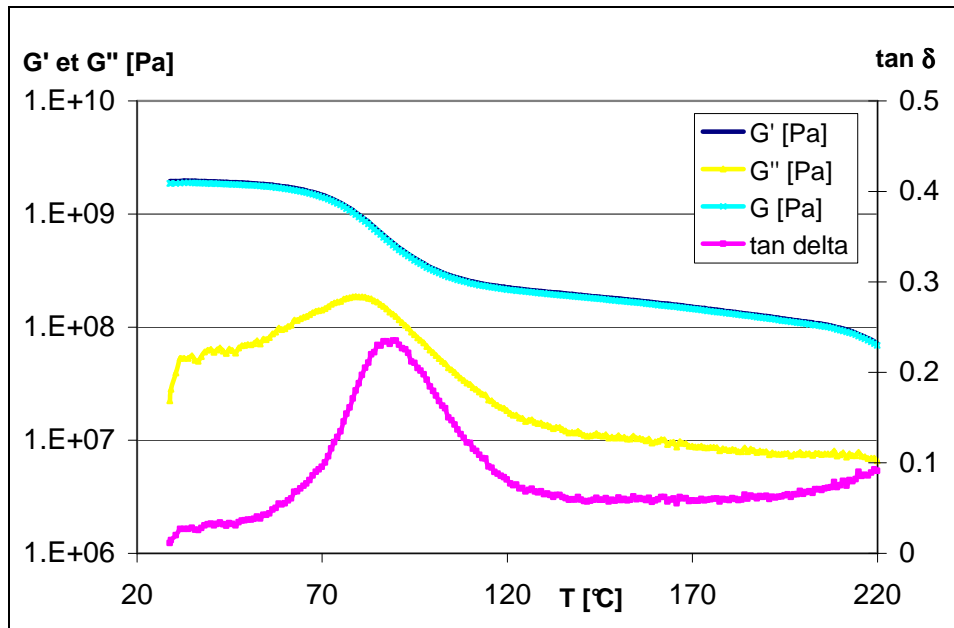


Figure 2.5 : essai dynamique sur la matrice 6002

Les diagrammes PVT fournis par le LMPB sont montrés Figure 2.6 : trois échantillons ont été testés à différentes pressions (200, 600 et 1000 bar) et on constate une très bonne reproductibilité.

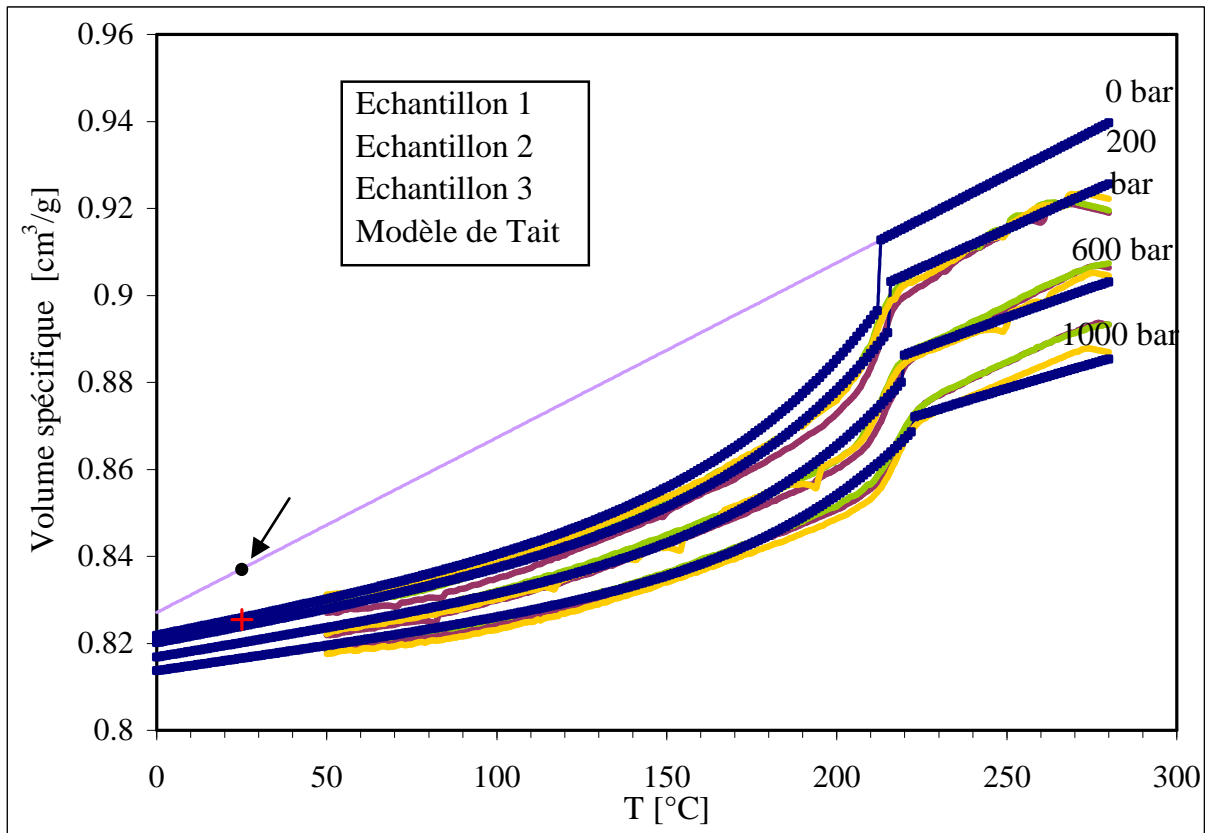


Figure 2.6 : diagramme PVT et modèle de Tait pour la matrice 6002

Le modèle de Tait est ajusté aux courbes expérimentales et un très bon accord entre le modèle et l'expérience est obtenu pour les valeurs de paramètres explicitées dans le tableau 2.1.

$b_{1m}$ [m <sup>3</sup> /kg]	$b_{2m}$ [m <sup>3</sup> /kg-K]	$b_{3m}$ [Pa]	$b_{4m}$ [1/K]	$b_5$ [K]	$b_6$ [K/Pa]	
0.0009125	0.000000402	143914000	0.003969	485.59469	1.0785E-07	
$b_{1s}$ [m <sup>3</sup> /kg]	$b_{2s}$ [m <sup>3</sup> /kg-K]	$b_{3s}$ [Pa]	$b_{4s}$ [1/K]	$b_7$ [m <sup>3</sup> /kg]	$b_8$ [1/K]	$b_9$ [1/Pa]
0.000852	1.451E-07	298091000	0.005061	0.0000449	0.02	3.521E-09

**Tableau 2.1** : paramètres du modèle de Tait

L'équation du volume spécifique est alors connue en fonction de la pression et de la température ; on peut donc le calculer à la pression atmosphérique (0 bar). On vérifie alors par des mesures de densité qu'il n'y a pas eu perte de masse pendant la manipulation : par exemple, pour l'échantillon 3, on a mesuré une densité de 1.211 g/cm<sup>3</sup>, ce qui correspond à un volume spécifique de 0.825 cm<sup>3</sup>/g (croix rouge sur la figure 2.6). La courbe à 0 bar passe très près de cette valeur, donc nos mesures sont correctes.

On vérifie aussi que le volume spécifique de la phase amorphe, déterminé à pression atmosphérique et à température ambiante (point noir indiqué par la flèche sur la figure 2.6), est cohérent avec la littérature : Brucato et al. [2002] et les données de Mitsubishi [2003] indiquent une densité de 1.19 g/cm<sup>3</sup> pour la phase amorphe, soit un volume spécifique de 0.84 cm<sup>3</sup>/g. Cette valeur correspond à la mesure expérimentale.

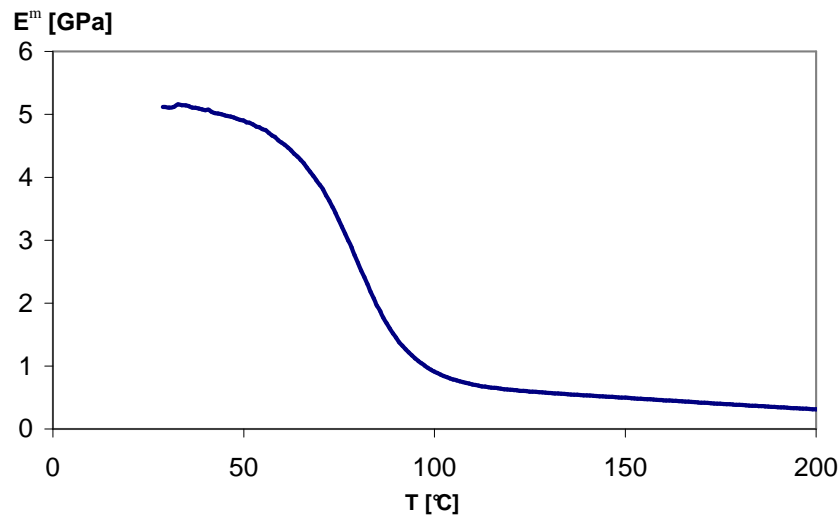
Enfin, on peut facilement calculer le coefficient de dilatation volumique à 25°C et à pression atmosphérique :  $\alpha_{V(T=25^\circ C)} = 1/V \times (\partial V/\partial T) = 1.7 \times 10^{-4} K^{-1}$  et en déduire la valeur du coefficient linéaire  $\alpha_{L(T=25^\circ C)} = \alpha_V/3 = 5.6 \times 10^{-5} K^{-1}$ . Celle-ci est du même ordre de grandeur que les données fournisseur où  $\alpha_L = 6 \times 10^{-5} K^{-1}$ .

Toutes ces vérifications nous permettent de conclure que la description du volume spécifique de la matrice par le modèle de Tait est tout à fait appropriée au matériau réel. Il est alors facile de calculer le module de compressibilité  $K$  de la matrice en fonction de la température (Eq.2.101).

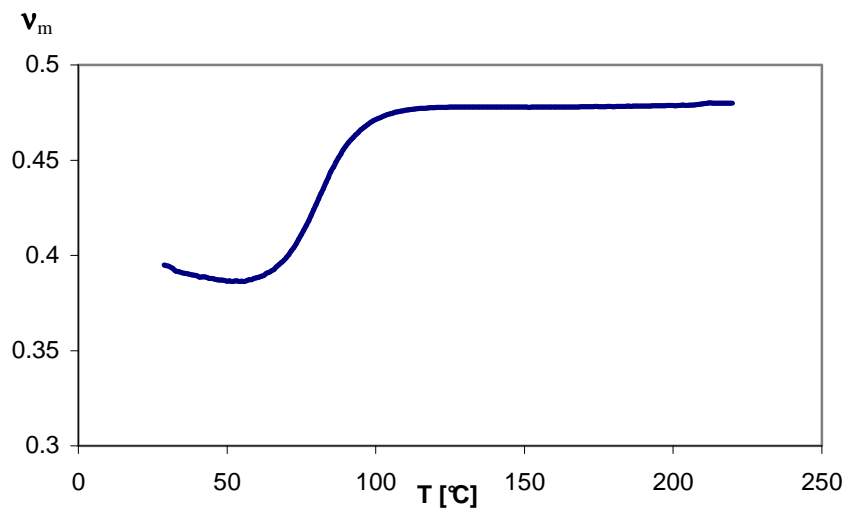
La connaissance des modules de rigidité  $G$  et de compressibilité  $K$  permettent d'obtenir le coefficient de Poisson  $\nu_m$ , ainsi que le module d'Young  $E^m$  de la matrice en fonction de la température. En effet, le matériau étant isotrope, on a le système d'équations suivantes qui s'applique :

$$\begin{cases} E^m = 2G(1+\nu_m) \\ K = \frac{E^m}{3(1-2\nu_m)} \end{cases} \quad \text{soit} \quad \begin{cases} E^m = \frac{3G}{1+G/3K} \\ \nu_m = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{E^m}{3K}\right) \end{cases} \quad (2.107)$$

Les graphes expérimentaux correspondant à l'évolution du module d'Young et du coefficient de Poisson en fonction de la température sont représentés sur les figures 2.7 et 2.8, respectivement : on observe un point d'inflexion vers  $T=85^{\circ}\text{C}$ , caractéristique de la transition vitreuse et on constate que le module d'Young diminue clairement avec la température, alors que c'est l'inverse pour le coefficient de Poisson qui tend vers une valeur constante de 0.47 à  $T > T_g$ .



**Figure 2.7 :** mesure du module élastique de la matrice 6002 en fonction de la température

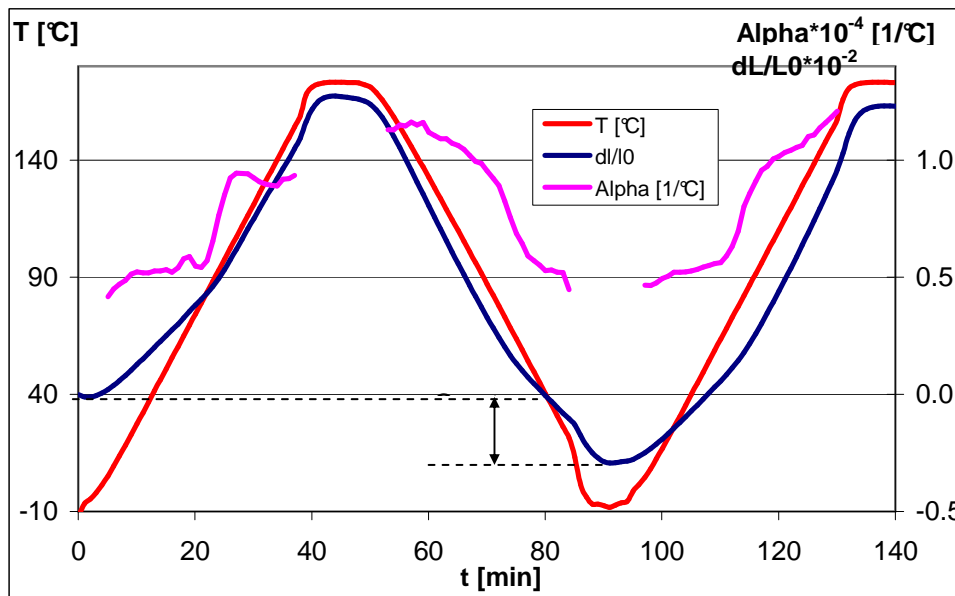


**Figure 2.8 :** mesure du coefficient de Poisson de la matrice 6002 en fonction de la température

A partir du module  $E^m$  et du coefficient de Poisson  $\nu_m$ , on obtient facilement les tenseurs de souplesses  $S^m$  et de rigidité  $C^m$  de la matrice isotrope, sur le même modèle que pour les fibres (Eq.2.103 et 2.104), sauf qu'ici ces tenseurs sont dépendants de la température.

## Coefficient de dilatation

Le coefficient de dilatation de la matrice a été mesuré dans les directions 1 et 2, et des résultats similaires ont été obtenus. Le cycle thermique imposé à un échantillon, la déformation relative mesurée, ainsi que le coefficient de dilatation calculé (pente en tout point), sont représentés sur la figure 2.9.



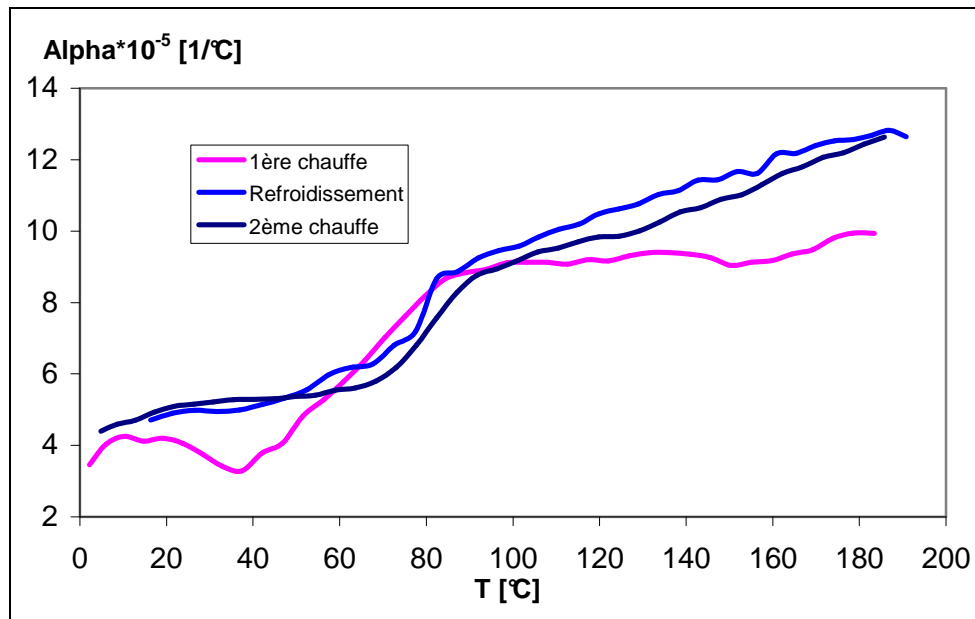
**Figure 2.9 :** matrice 6002 soumise à un essai de dilatométrie

Si on s'attarde quelque peu sur la courbe de déformation relative ( $dl/l_0$ ), on constate qu'un retrait linéaire apparaît entre le début de la 1<sup>ère</sup> chauffe et la fin du refroidissement (pointillés sur la figure 2.9) : il semble que le matériau n'ait pas atteint le maximum de cristallinité pendant l'injection et profite de l'isotherme à 200°C pour relaxer les contraintes thermiques et finir sa cristallisation. D'ailleurs les courbes de coefficient de dilatation sont différentes avant et après ce passage à 200°C, comme le montre la figure 2.10.

Pour vérifier cette hypothèse de post-cristallisation, on a mesuré la densité des échantillons tout de suite après l'injection, puis après un recuit de 10 min à 200°C. La densité  $\rho$  d'un échantillon est déterminée en le pesant dans l'air (masse A), puis dans l'eau (masse B), dont la densité  $\rho_0$  est connue en fonction de la température :

$$\rho = \frac{A}{A-B} \rho_0 \quad (2.108)$$

Les mesures ont été faites à température ambiante ( $T = 23^\circ\text{C}$ ). La résolution de la balance utilisée est de 0.0001g et une bonne reproductibilité a été obtenue.



**Figure 2.10** : coefficient de dilatation de la matrice pendant le cycle thermique (1<sup>ère</sup> chauffe, refroidissement et 2<sup>ème</sup> chauffe)

La cristallinité en masse a alors été déduite de la mesure de  $\rho$ , puisque :

$$X_{m-w} = \frac{\rho_c}{\rho} \cdot \frac{\rho - \rho_a}{\rho_c - \rho_a} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \rho_c = 1.25 \text{g.cm}^3 \\ \rho_a = 1.19 \text{g.cm}^3 \end{cases} \quad (2.109)$$

et la cristallinité absolue (ou en volume) est donnée par :

$$X_{m-v} = \frac{\rho - \rho_a}{\rho_c - \rho_a} \quad (2.110)$$

où  $\rho_c$  et  $\rho_a$  sont les densités des phases cristalline et amorphe, respectivement, et leurs valeurs sont données par Brucato et al. [2002] et Mitsubishi [2003].

Les résultats mesurés sont regroupés dans le tableau 2.2 ci-dessous.

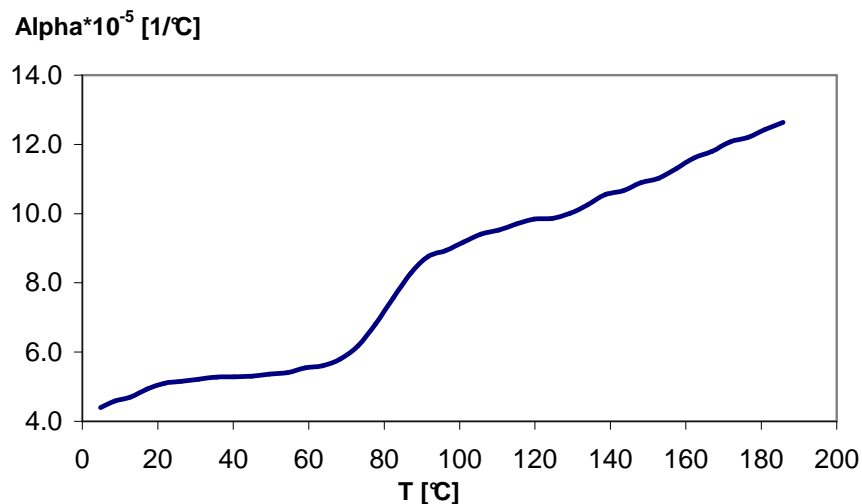
	Après injection			Après 10min de recuit à 200°C			
	Echantillon 1	Echantillon 2	Moyenne	Echantillon 1	Echantillon 2	Echantillon 3	Moyenne
$\rho$ [g/cm <sup>3</sup> ]	1.209	1.208	1.209	1.214	1.218	1.214	1.215
$X_{m-w}$	0.278	0.256	0.267	0.363	0.430	0.360	0.384
$X_{m-v}$	0.269	0.247	0.258	0.352	0.419	0.350	0.374

**Tableau 2.2** : mesure du taux de cristallinité après injection et après un recuit à 200°C

Il apparaît clairement que la cristallinité absolue  $X_{m-v}$  passe de 26% après injection à 37% après recuit. Pour comparaison, on peut préciser que Solvay a réalisé des mesures de densité et de cristallinité dans des conditions semblables (plaques de 1.3 mm et 2.2 mm de 6002, injectées dans un

moule à 130°C) et une densité de 1.216g/cm<sup>3</sup>, ainsi qu'une cristallinité absolue de 40%, ont été obtenues. Pour expliquer ce phénomène, on a mesuré la température réelle de notre moule à l'aide d'un thermocouple : bien que sa température soit programmée à 130°C, elle est en tout point inférieure à cette valeur et fluctue entre 120°C et 125°C. Or on sait que pour atteindre le maximum de cristallinité, la température du moule doit être supérieure à 120°C, surtout pour les plaques de 1 mm. Il aurait peut-être été plus judicieux et plus sûr de programmer le moule à 140°C ; malheureusement, nous n'avons pas eu le temps de procéder à de nouvelles injections.

Il est néanmoins possible de faire abstraction de cette post-cristallisation qui affecte la stabilité dimensionnelle des plaques injectées, en prenant en considération les résultats obtenus pendant le refroidissement ou la 2<sup>ème</sup> chauffe, c'est-à-dire après le passage à 200°C, quand le maximum de cristallinité est atteint (Figure 2.10). L'évolution du coefficient de dilatation  $\alpha^m$  de la matrice en fonction de la température est représentée sur la figure 2.11 : ici encore on retrouve le point d'inflexion vers Tg = 85°C.



**Figure 2.11** : coefficient de dilatation de la matrice 6002

Le tenseur des coefficients de dilatation de la matrice isotrope est donné, à chaque température, par l'Eq.2.105 où  $\alpha^f$  est remplacé par  $\alpha^m$ .

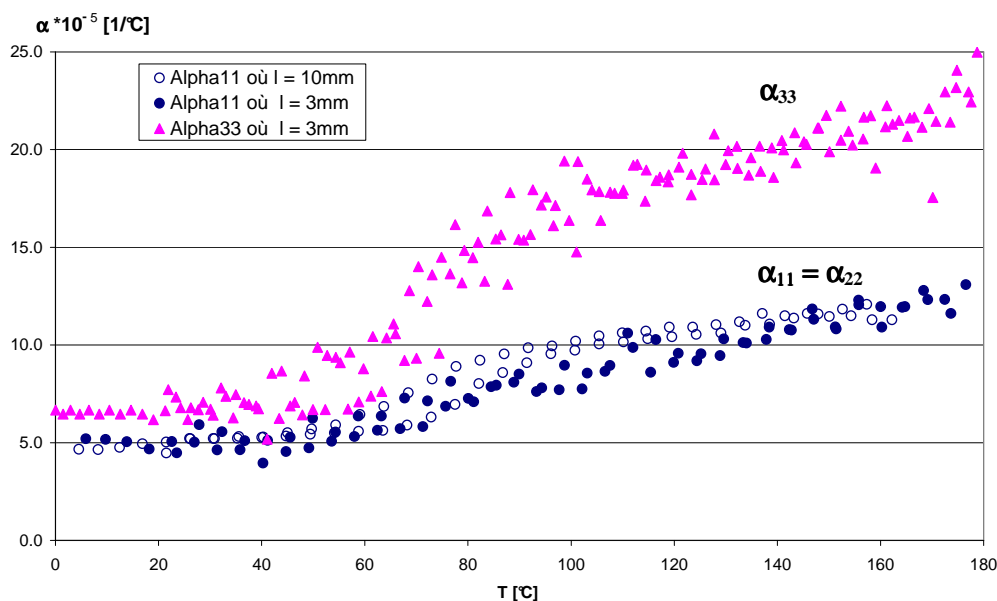
### Isotropie transverse

Nous avons testé, par curiosité et d'après les conseils de Solvay, le comportement de la matrice dans la direction 3. Pour cela, nous avons réalisé des essais de dilatométrie sur des cubes de 3 mm de côté (3 échantillons testés). On rappelle que les mesures précédentes dans les directions 1 et 2 étaient réalisées sur des échantillons de longueur 10 mm ; afin que les résultats soient comparables, de nouveaux essais ont été menés dans les directions 1 et 2 sur des cubes de 3 mm de côté : la figure 2.12 montre les résultats correspondant à la 2<sup>ème</sup> chauffe et on constate qu'il n'y a pas une grande différence entre les



mesures faites sur des échantillons de 10 mm de longueur (cercles vides) et de 3 mm de longueur (cercles pleins). En revanche, un gros écart est obtenu entre le coefficient  $\alpha_{33}$  et les deux autres, et en l'occurrence :  $\alpha_{33} \approx 2\alpha_{11} = 2\alpha_{22}$ .

Nous n'avons pas pu vérifier que le module d'Young dans la direction 3 était différent des deux autres, car la trop faible épaisseur des plaques (3 mm) ne nous permet pas d'effectuer des essais de traction. Mais les résultats de dilatométrie suffisent à nous faire réaliser que la matrice est en réalité isotrope transverse. On sait que la matrice MXD6 ne cristallise pas facilement, c'est pourquoi des particules nucléantes sont ajoutées, et notamment du talc qui est sous forme de lamelles. Il semble alors que pendant l'injection, ces lamelles prennent une orientation préférentielle dans le plan d'injection, qui est responsable du caractère isotrope transverse de la matrice. En revanche, la seule présence de quelques pourcent de talc ne peut pas créer mécaniquement une telle variation du coefficient de dilatation ; nous pensons qu'une microstructure cristalline spécifique est générée autour des particules de talc et par la présence des agents nucléants. Par contre, en présence de fibres (grades 1002 et 1022), Solvay pense que ces lamelles devraient s'orienter aléatoirement, rendant alors à la matrice un comportement plus isotrope.



**Figure 2.12 :** mesure du coefficient de dilatation normal (direction 3) de la matrice 6002

### 2.3 Propriétés macroscopiques des composites injectés

Dans cette partie, on s'intéresse aux propriétés des grades 1002 et 1022 injectés. La présence de fibres rend les matériaux anisotropes, c'est pourquoi les propriétés doivent être mesurées dans les 3 directions principales.

Les essais de traction uniaxiaux ne peuvent être appliqués que dans les directions 1 et 2 (l'épaisseur des pièces étant trop fine), ce qui permet de mesurer les modules longitudinal  $E_1$  et transverse  $E_2$  ; ces essais seront réalisés à température ambiante et pour le grade 1002 à 120°C.

Les essais de dilatométrie peuvent être menés dans les 3 directions et le même cycle thermique que pour la matrice est imposé, à savoir une chauffe, un refroidissement et une 2<sup>ème</sup> chauffe ; la gamme de températures allant de -10°C à 200°C. Comme pour la matrice (Figure 2.9), un retrait linéaire est mesuré après l'isotherme à 200°C : ce retrait est faible dans la direction d'écoulement et beaucoup plus important dans les autres directions. A titre d'exemple pour les plaques de 1 mm et pour le grade 1002, les figures 2.13, 2.14 et 2.15 montrent le cycle thermique auquel le matériau est soumis et met en évidence les retraits mesurés à 20°C : dans la direction d'écoulement, on a une différence de  $dl/l_0$  égale à  $1.7 \times 10^{-3}$  ; dans la direction transverse, elle vaut  $8 \times 10^{-3}$  et dans la direction normale, elle vaut  $29 \times 10^{-3}$ .

Il est légitime de supposer que le maximum de cristallinité n'a pas été atteint, comme pour la matrice pure, pendant l'injection et pour le vérifier, nous avons mesuré le taux de cristallinité de la matrice après injection et après un recuit à 200°C. La densité  $\rho_{1002}$  de l'échantillon de grade 1002 est mesurée par le principe d'Archimède (pesée dans l'air et dans l'eau) et la fraction volumique exacte des fibres  $V_f$  par pyrolyse : on brûle la matrice pendant 4h à 600°C et on pèse les fibres restantes. La densité  $\rho_m$  de la matrice est calculée par une simple loi des mélanges :  $\rho_{1002} = V_f \rho_f + V_m \rho_m$ , puis on en déduit le taux de cristallinité d'après les équations 2.109 et 2.110. On obtient en l'occurrence les résultats réunis dans tableau 2.3 : le taux de cristallinité absolue évolue de 25% après injection à 38.5% après recuit, de façon semblable à la matrice.

	Après injection	Après recuit
$\rho_{1002}$ [g/cm <sup>3</sup> ]	1.433	1.443
$\rho_m$ [g/cm <sup>3</sup> ]	1.208	1.215
$X_{m-w}$	0.261	0.396
$X_{m-v}$	0.252	0.385

**Tableau 2.3** : mesure du taux de cristallinité après injection et après un recuit à 200°C

Pour prendre en compte le matériau totalement cristallisé et ainsi être cohérent avec les mesures effectuées sur la matrice pure, nous considérerons comme coefficients de dilatation, les résultats obtenus indifféremment pendant le refroidissement ou la 2<sup>ème</sup> chauffe.

Les résultats des essais de traction et de dilatométrie effectués sur les deux grades de composite et pour les deux épaisseurs de plaque sont détaillés dans les paragraphes ci-dessous.

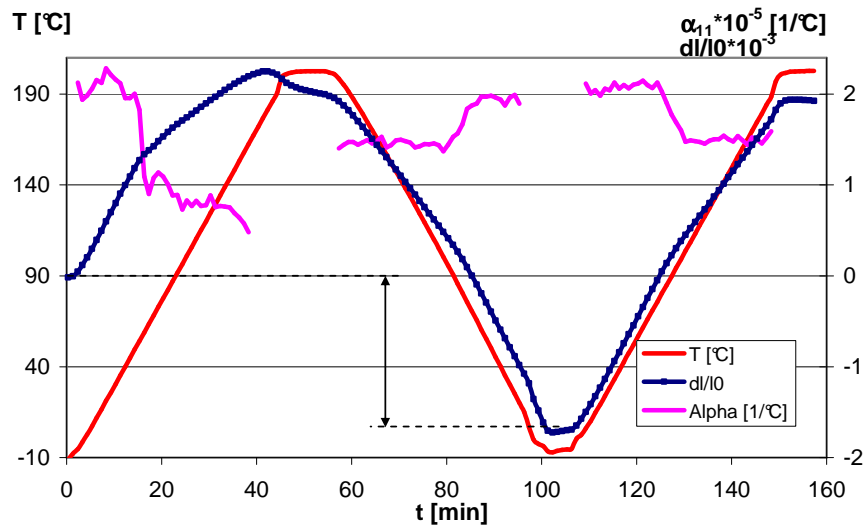


Figure 2.13 : retrait linéaire dans la direction d'écoulement. Grade 1002, plaque de 1 mm

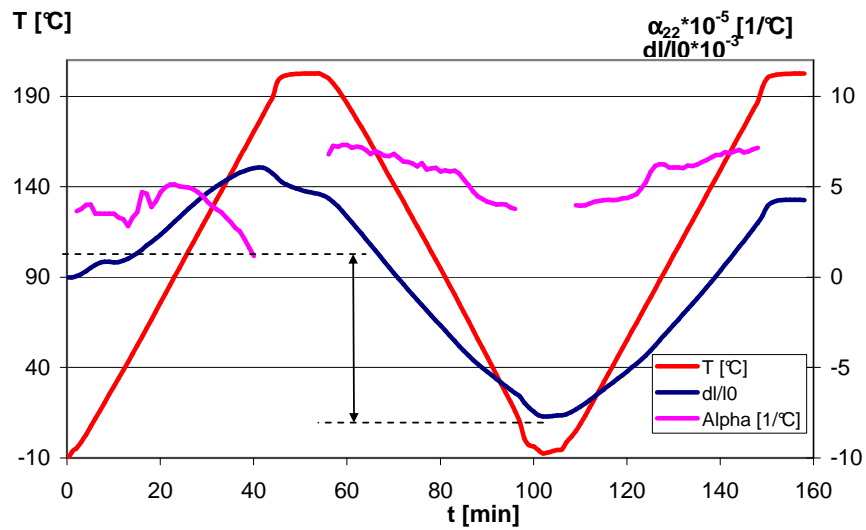


Figure 2.14 : retrait linéaire dans la direction transverse. Grade 1002, plaque de 1 mm

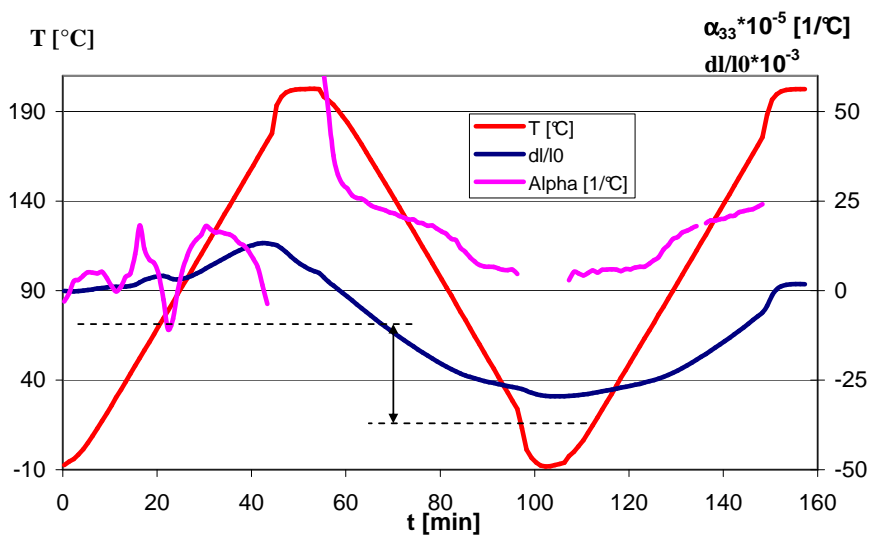


Figure 2.15 : retrait linéaire dans la direction normale. Grade 1002, plaque de 1 mm

### a) Grade 1002 – plaque de 1 mm d'épaisseur

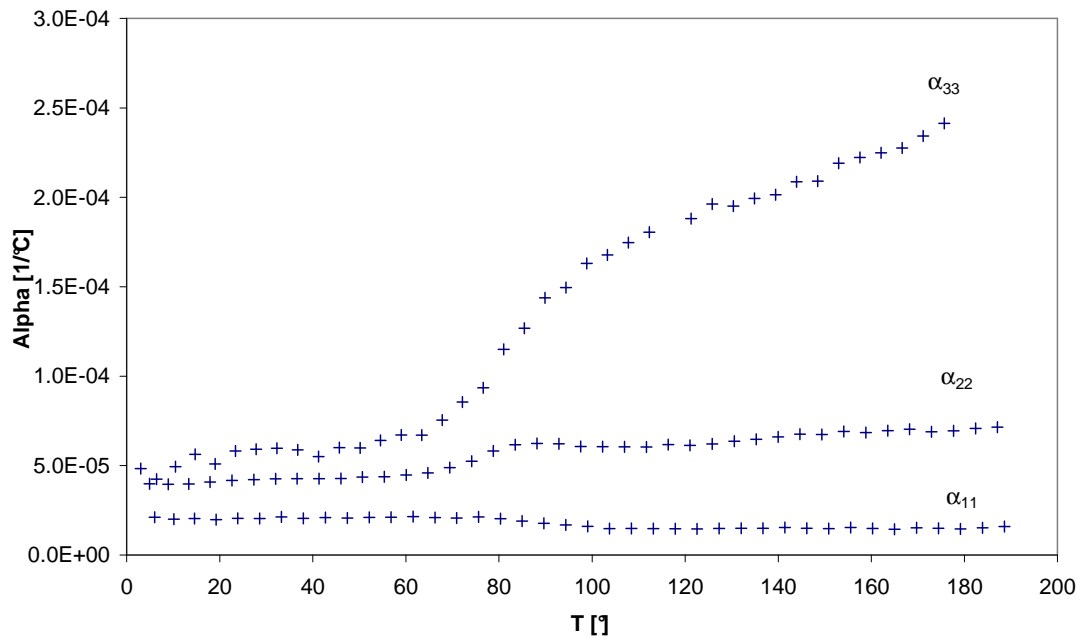
Les modules d'Young  $E_1$  et  $E_2$  sont mesurés à 23°C et 120°C ; à titre indicatif, les essais de traction correspondants à 120°C sont illustrés dans l'annexe 3. Les résultats sont réunis dans le tableau 2.4.

T	$E_1$ [MPa]	$E_2$ [MPa]
23°C	11803	7223
120°C	3739.7	1256.5

**Tableau 2.4** : modules élastiques à 23°C et 120°C pour les plaques de 1 mm du grade 1002

On observe que les modules sont largement supérieurs à ceux de la matrice pure, ce qui illustre l'effet des renforts. De plus, on obtient logiquement des modules supérieurs dans la direction longitudinale, puisque la plupart des fibres y sont orientées et on constate que les modules chutent littéralement au-delà de  $T_g$ .

Concernant les dilatations, les coefficients linéaires mesurés dans les 3 directions sont représentés sur la figure 2.16. On constate que la dilatation est très grande dans la direction 3, alors qu'elle est beaucoup plus faible dans les deux autres directions : cela met en évidence l'effet des fibres, qui sont principalement orientées dans le plan d'injection (1,2).



**Figure 2.16** : mesure des coefficients de dilatation linéaires pour les plaques de 1 mm du grade 1002

On notera que l'écart entre les 3 coefficients est plus important au-delà de  $T_g$  et que  $\alpha_{11}$  diminue avec la température, alors que les autres composantes croissent.

## b) Grade 1002 – plaque de 3 mm d'épaisseur

Pour la plaque de 3 mm, les modules d'Young  $E_1$  et  $E_2$  sont aussi mesurés à deux températures (23°C et 120°C) et les résultats sont réunis dans le tableau 2.5. Les essais de traction correspondants à 120°C sont illustrés dans l'annexe 4.

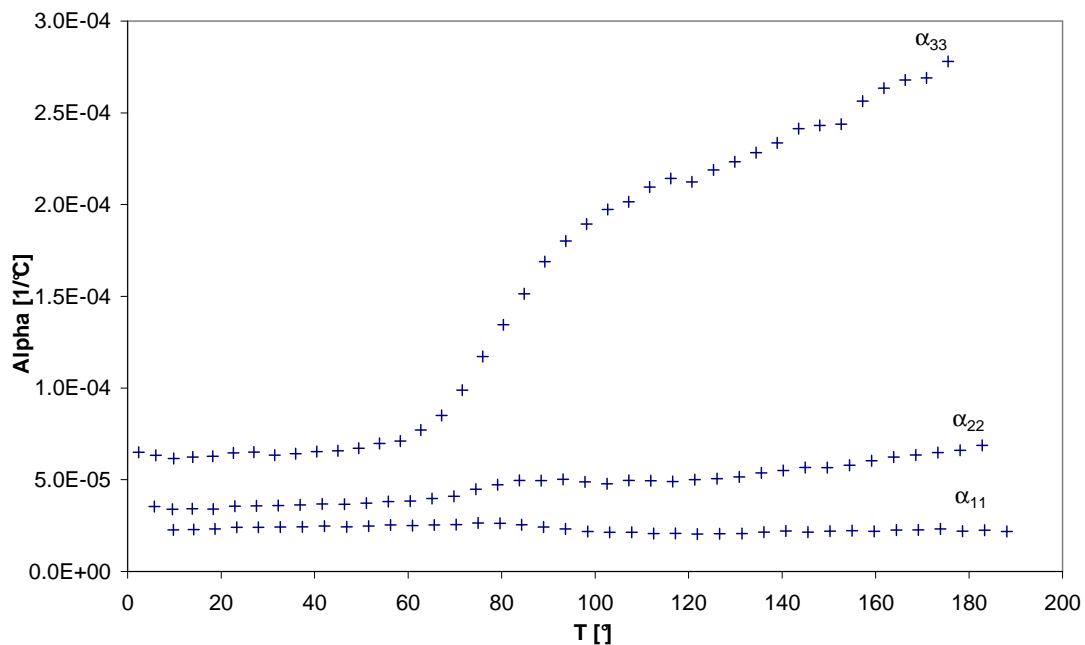
T	$E_1$ [MPa]	$E_2$ [MPa]
23°C	10914	8859
120°C	3247.6	2270.2

**Tableau 2.5** : modules élastiques à 23°C et 120°C pour les plaques de 3 mm du grade 1002

Ici encore  $E_1 > E_2$ , mais on constate que l'écart entre les directions longitudinale et transversale s'est resserré par rapport aux résultats des plaques de 1 mm : cela est dû à la structure cœur-peau de la distribution des fibres, qui est plus prononcée pour les plaques de 3 mm.

Les coefficients de dilatation mesurés dans les 3 directions sont regroupés sur la figure 2.17. Là aussi on constate que l'écart se réduit entre les directions 1 et 2, alors que la composante  $\alpha_{33}$  est largement supérieure.

Comme pour les plaques de 1 mm, on peut noter que  $\alpha_{22}$  et  $\alpha_{33}$  augmentent avec la température, alors que la tendance s'inverse pour  $\alpha_{11}$ .



**Figure 2.17** : mesure des coefficients de dilatation linéaires pour les plaques de 3 mm du grade 1002

### c) Grade 1022 – plaque de 1 mm d'épaisseur

Pour le grade 1022, les essais de traction n'ont été réalisés qu'à température ambiante et on a mesuré, pour la plaque de 1 mm, que :  $E_1 = 19618MPa$  et  $E_2 = 10126MPa$  à 23°C. Ces valeurs sont supérieures à celles mesurées dans les mêmes conditions pour le grade 1002 (tableau 2.4) : cela met en évidence le rôle que tiennent les fibres pour renforcer le matériau.

Concernant les essais avec le dilatomètre, nous n'avons mesuré que les composantes  $\alpha_{11}$  et  $\alpha_{22}$  du tenseur des dilatations : la figure 2.18 représente l'évolution des ces deux coefficients linéaires en fonction de la température. Nous avons volontairement modifié l'échelle par rapport au grade 1002, afin que l'évolution des composantes soit plus facilement visible. Il apparaît que les coefficients de dilatation mesurés sont assez proches de ceux des plaques de 1 mm pour le grade 1002.

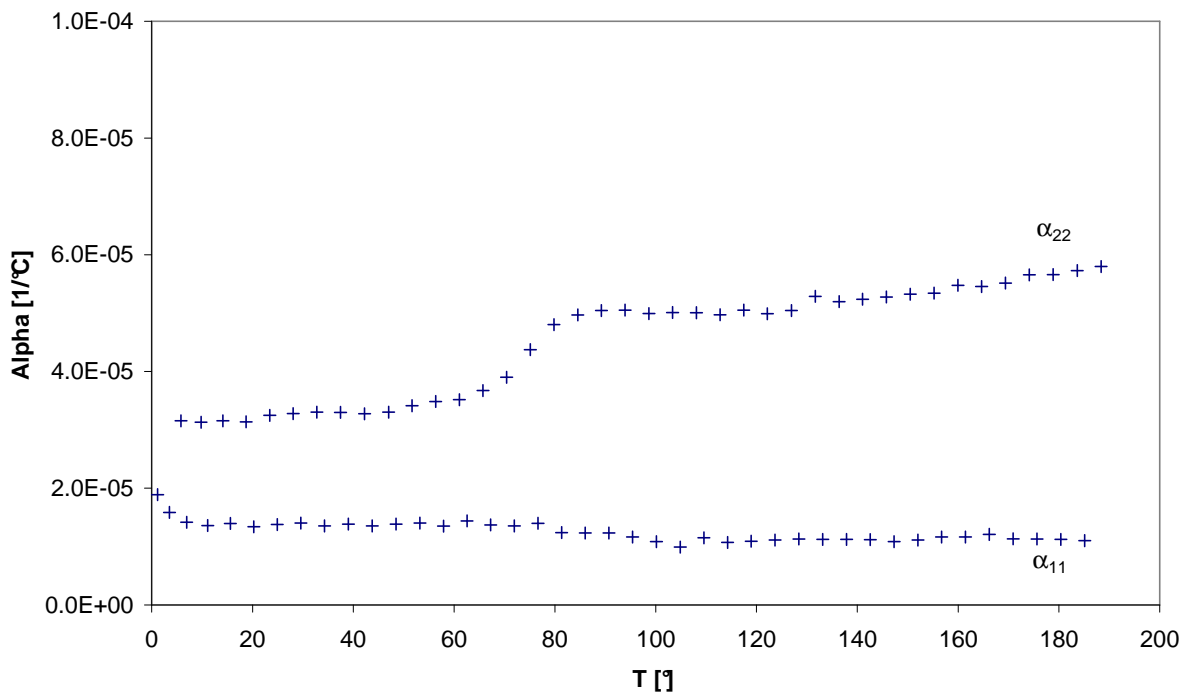
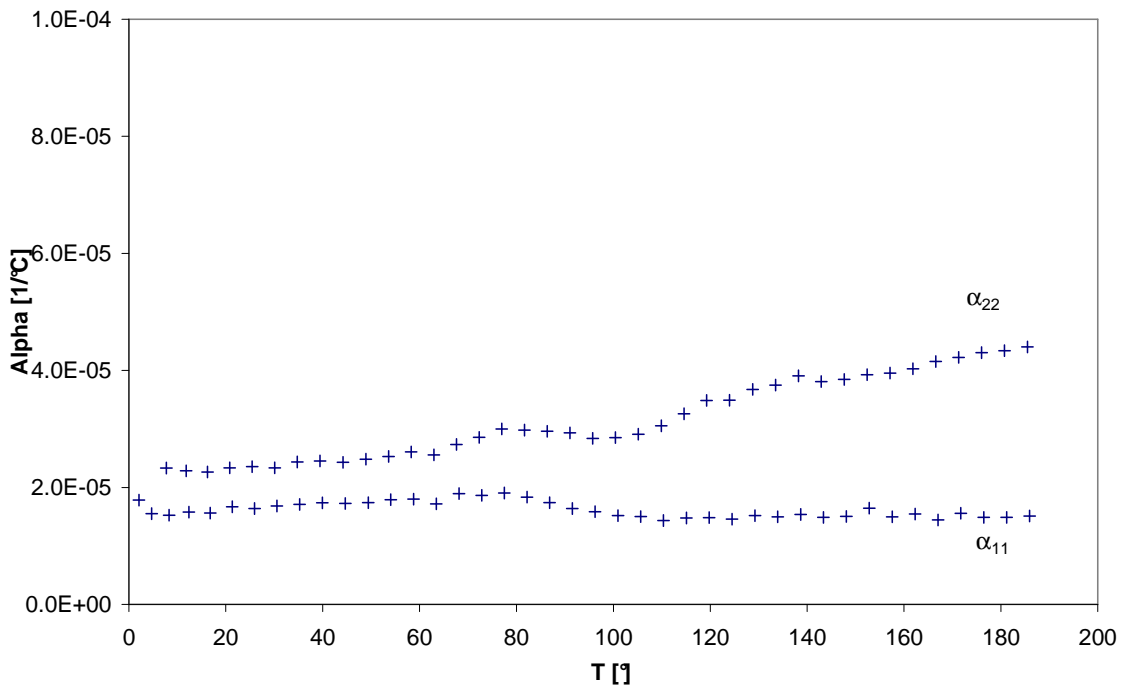


Figure 2.18 : mesure des coefficients de dilatation linéaires pour les plaques de 1 mm du grade 1022

### d) Grade 1022 – plaque de 3 mm d'épaisseur

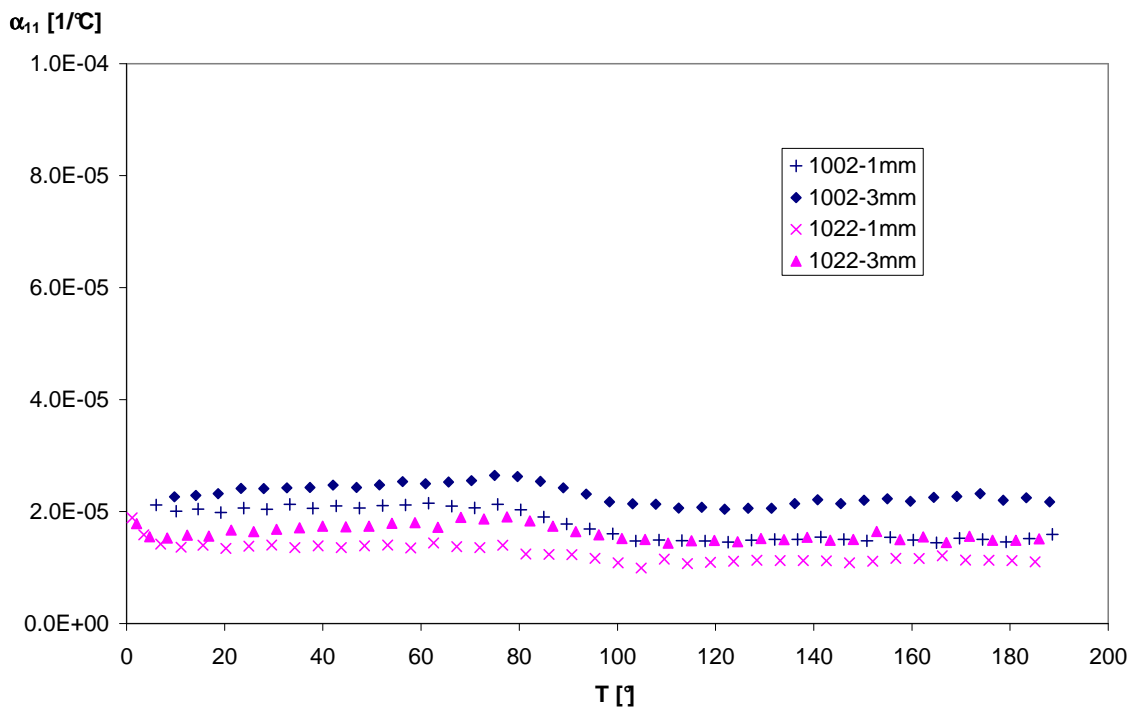
Les modules élastiques mesurés à température ambiante sont  $E_1 = 16596MPa$  et  $E_2 = 12135MPa$ . Ces valeurs sont logiquement supérieures à celles mesurées dans les mêmes conditions pour le grade 1002 (tableau 2.5).

Les coefficients de dilatation dans les directions 1 et 2 sont représentés sur la figure 2.19 en fonction de la température ; on constate qu'ils ne varient pas beaucoup sur toute la gamme de température considérée.



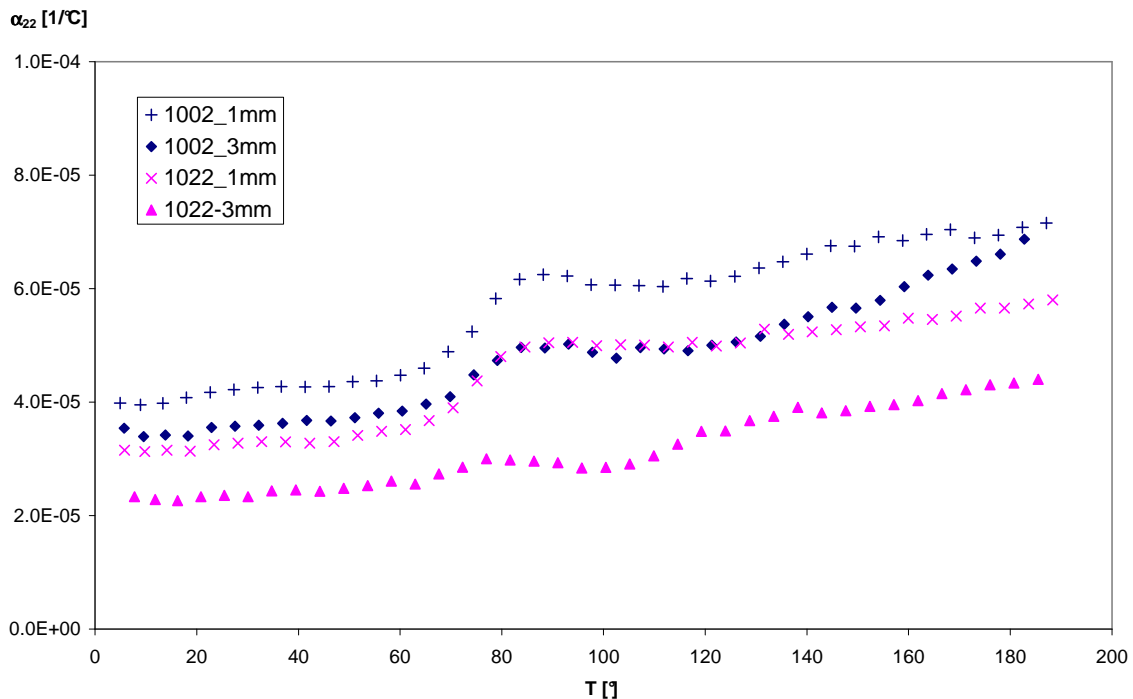
**Figure 2.19** : mesure des coefficients de dilatation linéaires pour les plaques de 3 mm du grade 1022

Afin d'évaluer l'influence du taux de fibres sur les coefficients de dilatation, la figure 2.20 regroupe les mesures de la composante  $\alpha_{11}$  pour les deux grades et pour les deux épaisseurs.



**Figure 2.20** : comparaison des coefficients de dilatation linéaires mesurés dans la direction longitudinale (direction 1) pour les grades 1002 et 1002 et pour les plaques de 1 mm et de 3 mm

De la même manière, la figure 2.21 illustre les composantes  $\alpha_{22}$  mesurées pour les 2 grades et les 2 épaisseurs.



**Figure 2.21** : comparaison des coefficients de dilatation linéaires mesurés dans la direction transverse (direction 2) pour les grades 1002 et 1022 et pour les plaques de 1 mm et de 3 mm

On constate qu'un taux plus élevé de fibres réduit les coefficients de dilatation linéaires dans les directions longitudinale et transversale.

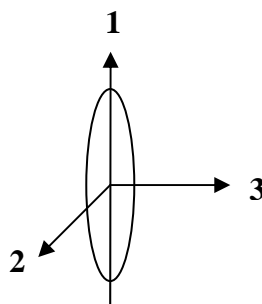
### 3. CONFRONTATION MODELES / EXPERIENCES

Nous avons montré dans le 1<sup>er</sup> paragraphe de cette partie que trois approches, basées sur le modèle de Mori-Tanaka, ont été développées : la méthode directe de Mori-Tanaka, la procédure en deux étapes où les rigidités sont moyennées et la procédure en deux étapes où les souplesses sont moyennées. Nous avons vu également que la modélisation par l'approche de Mori-Tanaka a suscité une littérature très abondante. Cependant, aucun auteur ne s'est intéressé au problème dans son intégralité, en cherchant à prédire les propriétés thermo-élastiques en fonction de l'orientation des renforts et de la température. Nous prenons justement en compte ces deux paramètres dans nos prédictions. Aussi les paramètres d'entrée de la modélisation comprennent les caractéristiques de chaque constituant en fonction de la température, définies dans le paragraphe précédent, ainsi que la distribution des fibres dans la matrice, mesurée dans la partie 1 pour chacun des grades et pour les deux épaisseurs de plaque. On rappelle que dans la méthode directe de Mori-Tanaka, la distribution d'orientation est utilisée, alors que dans les procédures en deux étapes, le tenseur d'orientation d'ordre 2 mesuré



expérimentalement est utilisé afin d'estimer le tenseur d'ordre 4, via l'une des 4 hypothèses de fermeture mentionnées précédemment (linéaire, quadratique, hybrides de type A et de type B).

On suppose que la présence de fibres rend la matrice isotrope en orientant les particules de talc plus aléatoirement. Dans ce cas, on ignorera le caractère isotrope transverse observé et on considérera les coefficients de dilatation mesurés dans le plan d'injection (et non dans l'épaisseur). Les fibres sont considérées comme des ellipsoïdes de révolution et de section circulaire (Figure 2.22), « prolate spheroids » en anglais. Le tenseur d'Eshelby correspondant, dans le cas où la matrice est isotrope et où l'axe de révolution des ellipsoïdes est l'axe 1, est donné en annexe 1 [Brown et Clarke, 1975 ; Mura, 1991].



**Figure 2.22** : représentation de l'ellipsoïde correspondant à une fibre

Nous allons maintenant tester ces différents modèles en les confrontant aux mesures expérimentales macroscopiques, c'est-à-dire aux mesures des modules élastiques et des coefficients de dilatation des composites injectés.

### 3.1 Comparaison des différentes approches

#### a) Cas du grade 1002 - plaque de 1 mm d'épaisseur

L'utilisation des 4 hypothèses de fermeture dans les approches de moyenne des rigidités et moyenne des souplesses (procédure en deux étapes), ainsi que l'utilisation de la méthode directe de Mori-Tanaka engendrent un total de 9 évaluations des propriétés élastiques et de 6 estimations des tenseurs de dilatation.

#### Prédiction des modules élastiques

Le tableau 2.6 présente les modules d'Young mesurés et estimés dans la direction d'écoulement ( $E_1$ ) du composite et dans la direction transverse ( $E_2$ ), à température ambiante et à 120°C. Il est intéressant de noter que le fait de considérer une température basse (<T<sub>g</sub>) et une température haute (>T<sub>g</sub>) permet

de mieux tester les différents modèles : en fait, on considère la même microstructure (c'est-à-dire la même distribution des fibres) avec deux contrastes différents entre les phases, puisque les propriétés de la fibre sont supposées indépendantes de la température, alors que le module d'Young de la matrice polymère décroît fortement au-delà de la température de transition vitreuse ; aussi à 120°C, le contraste entre les phases est plus grand qu'à température ambiante et il s'ensuit que le rapport de  $E_1$  sur  $E_2$  augmente avec la température (tableau 2.6).

		exp.	Méthode directe Mori-Tanaka	Procédure en deux étapes							
				Moyenne des rigidités				Moyenne des souplesses			
				lin.	quad.	hyb.A	hyb.B	lin.	quad.	hyb.A	hyb.B
$T_{amb}$	$E_1$	11.80	12.52	10.58	11.05	10.86	11.02	9.13	9.59	9.35	9.54
	$E_2$	7.22	7.49	7.40	6.91	7.16	6.96	7.15	6.89	7.02	6.91
120 °C	$E_1$	3.74	4.32	3.03	3.15	3.25	3.19	1.36	1.51	1.43	1.49
	$E_2$	1.26	1.26	1.14	0.94	1.06	0.96	0.98	0.91	0.94	0.92

**Tableau 2.6** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions pour le grade 1002, plaque de 1 mm d'épaisseur

Pour la procédure en deux étapes, on observe que les prédictions sont meilleures quand le contraste entre les phases est plus faible, c'est-à-dire à basse température, et ceci est d'autant plus vrai pour la composante  $E_2$  (précision à moins de 4%). En revanche, les plus gros écarts sont obtenus pour la prédiction de  $E_1$  à haute température, qui sont plus de 2 fois plus faibles (en moyennant les souplesses et en prenant l'équation de fermeture linéaire).

Il apparaît aussi presque systématiquement que le fait de moyenner les rigidités procure de meilleurs résultats que de moyenner les souplesses, surtout pour la composante  $E_1$  : en effet, le module  $E_1$  est très largement sous-estimé quand on moyenne les souplesses, et ce aux deux températures.

Parmi les différentes équations de fermeture appliquées quand on moyenne les rigidités, il semble que globalement (pour les 2 composantes considérées aux 2 températures), l'approximation linéaire procure des résultats légèrement meilleurs que les autres, même si elle a tendance à sous-estimer les modules (jusqu'à -19% d'écart pour  $E_1$  à 120°C). On notera aussi que les différences entre les deux variantes de l'approximation hybride sont assez faibles et que leurs prédictions ne sont pas toujours bornées par celles des équations linéaires et quadratiques (alors que chaque composante du tenseur d'ordre 4 l'est) : cette observation met en évidence la complexité des modèles d'homogénéisation qui prennent en compte les interactions entre constituants.

La prédiction des modules élastiques par la méthode directe de Mori-Tanaka est assez bonne, avec une erreur relative maximale de 15% quand on évalue  $E_1$  à 120°C.

Si on ne se base que sur les modules d'Young, un avantage certain apparaît pour la méthode directe de Mori-Tanaka. Concernant la procédure en deux étapes, des résultats légèrement meilleurs apparaissent quand on combine l'approximation linéaire avec la méthode de moyenne des rigidités. L'évaluation des coefficients de dilatation va constituer un second test de ces différents modèles.

### **Prédiction des coefficients de dilatation**

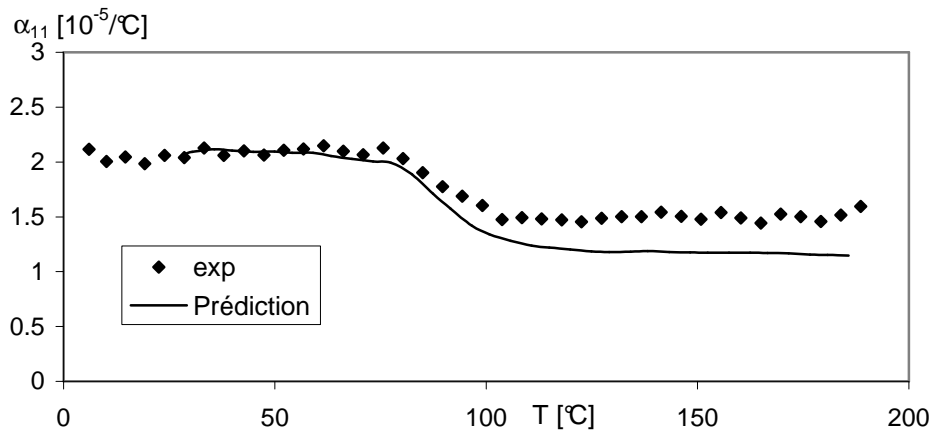
Les coefficients de dilatation sont obtenus en utilisant les résultats prédits en élasticité dans l'équation de Levin. Ils sont évalués dans les 3 directions du repère de référence, qui est le repère d'injection. Cependant, il est important de préciser que le repère d'injection (1,2,3) ne correspond pas exactement aux axes de symétrie du matériau, car si on regarde les tenseurs d'orientation d'ordre 2 mesurés dans la partie 1, on s'aperçoit que les composantes  $a_{12}$ ,  $a_{23}$  et  $a_{31}$  sont faibles mais pas exactement égales à 0. Il en résulte que les composantes  $\alpha_{11}$ ,  $\alpha_{22}$  et  $\alpha_{33}$  estimées par rapport au repère d'injection ne correspondent pas exactement aux valeurs principales de  $[\alpha]$ . Des valeurs faibles de  $\alpha_{12}$ ,  $\alpha_{23}$  et  $\alpha_{31}$  ont été prédites (valeurs proches de 0), mais ne seront pas montrées ici.

Dans un premier temps, les coefficients de dilatation mesurés expérimentalement sont comparés aux prédictions par la méthode directe de Mori-Tanaka sur la figure 2.23.

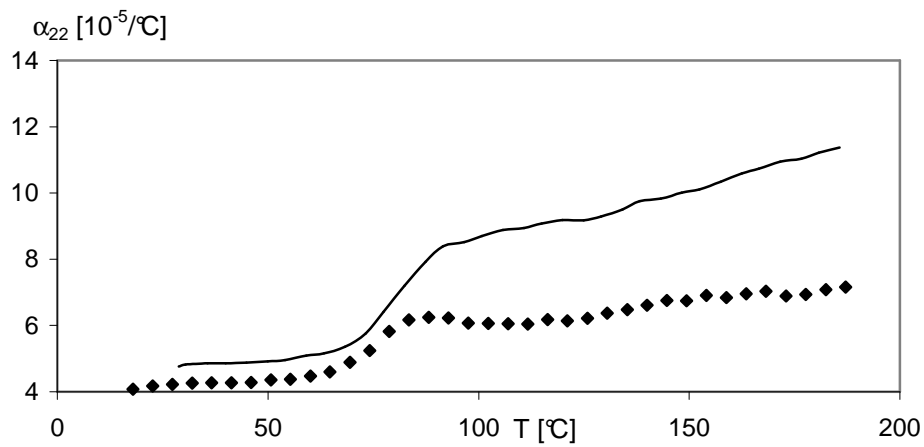
On constate que les tendances sont correctement prédites pour les 3 composantes, c'est-à-dire que  $\alpha_{11}$  diminue avec la température, alors que  $\alpha_{22}$  et  $\alpha_{33}$  augmentent. Il apparaît aussi un bon accord quantitatif entre les évaluations des 3 coefficients de dilatation et les mesures expérimentales, en particulier pour  $\alpha_{11}$ , mais l'erreur peut atteindre plus de 30% pour  $\alpha_{22}$  et  $\alpha_{33}$  à haute température.

Dans un deuxième temps, on s'intéresse aux estimations déduites de la procédure en deux étapes qui moyenne les souplesses. Rappelons que cette approche est indépendante de l'équation de fermeture utilisée et les prédictions ne dépendent que du tenseur d'orientation d'ordre 2. Les résultats sont superposés aux mesures expérimentales dans la figure 2.24. On notera que pour être comparable à la Figure 2.23-a, la figure 2.24-a est deux fois plus haute, puisque l'échelle est 2 fois plus grande. On garde ainsi un rapport largeur / échelle constant.

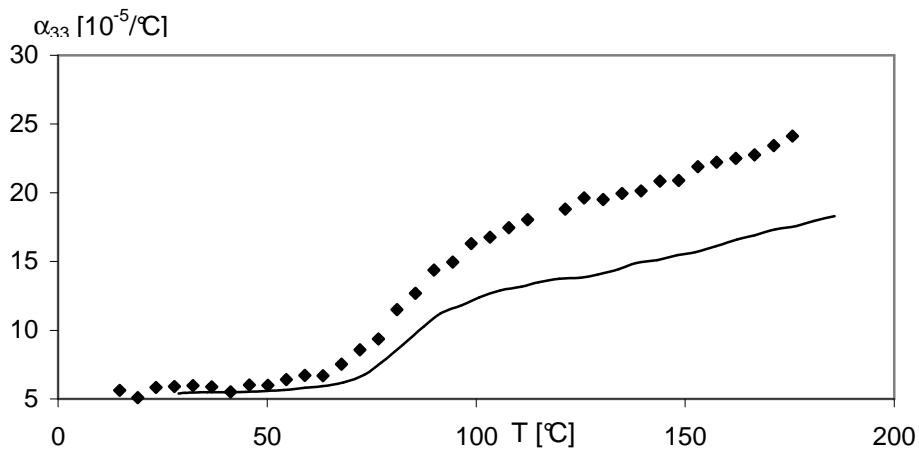
On se rend compte que les prédictions ne sont pas très bonnes : une augmentation de  $\alpha_{11}$  avec la température est prédite plutôt que la diminution mesurée et pour les 3 composantes l'écart avec les valeurs expérimentales croît continuellement quand la température augmente.



a)

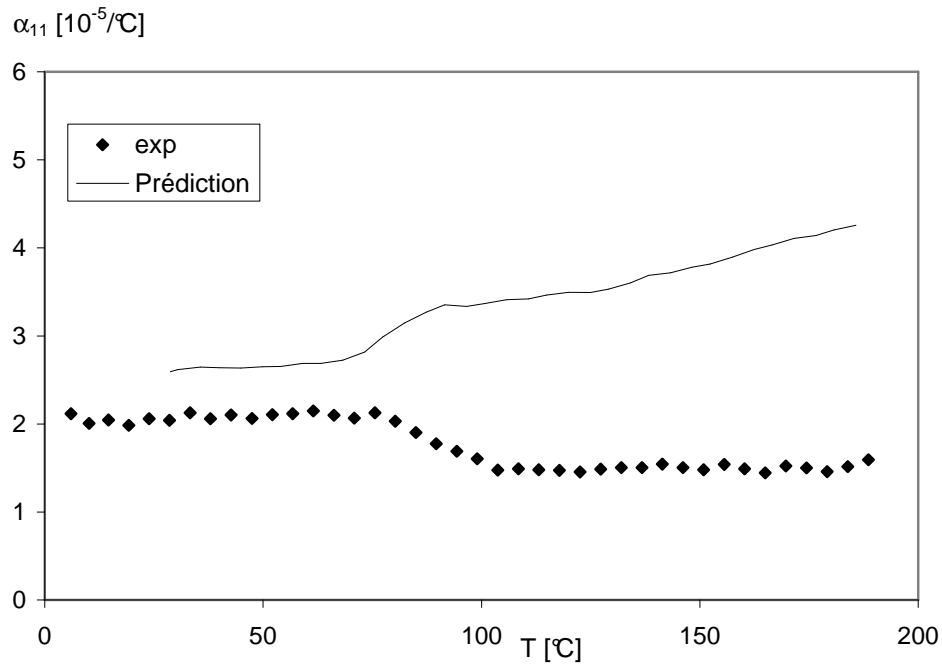


b)

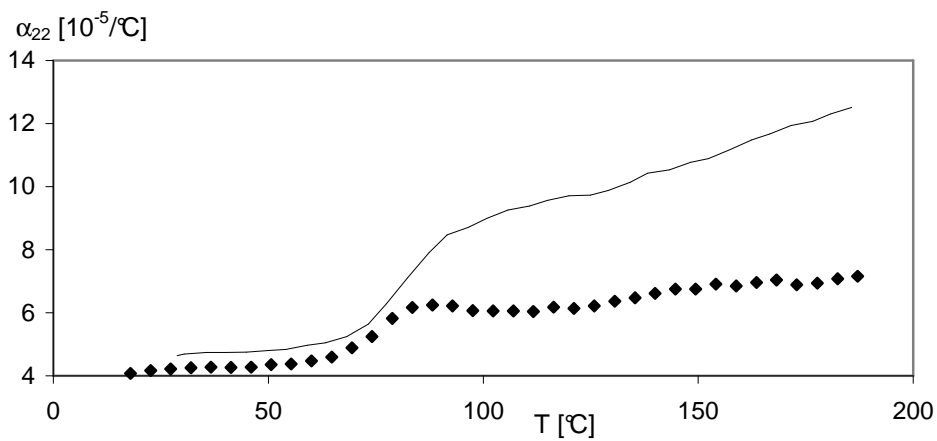


c)

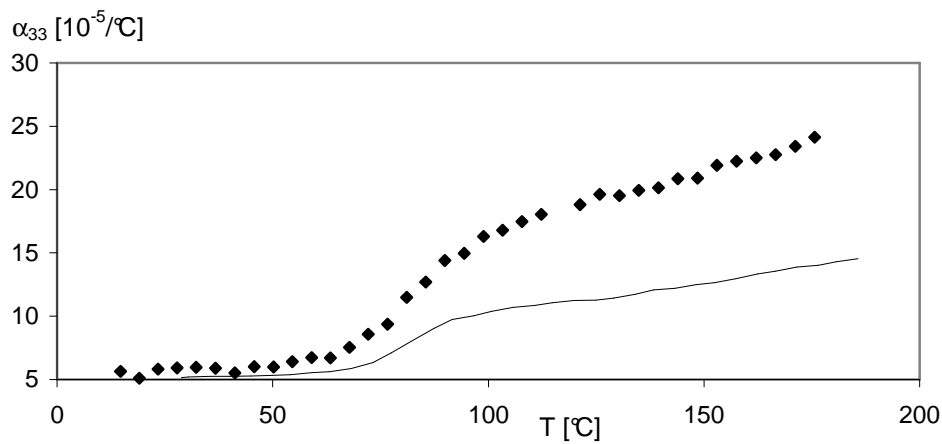
**Figure 2.23** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la méthode directe de Mori-Tanaka, selon les trois axes du composite. Grade 1002, plaque de 1 mm



a)



b)



c)

**Figure 2.24** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les souplesses, selon les trois axes du composite. Grade 1002, plaque de 1 mm

Plus de flexibilité et par conséquent un meilleur accord avec l'expérience peuvent être attendus, en revanche, de la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités, du fait du rôle joué par les différentes équations de fermeture sur les prédictions. La figure 2.25 réunit les résultats obtenus par les 4 hypothèses de fermeture, ainsi que les données expérimentales. Ici aussi, on a tâché de garder le même rapport largeur / échelle sur les figures 2.23-a et 2.25-a.

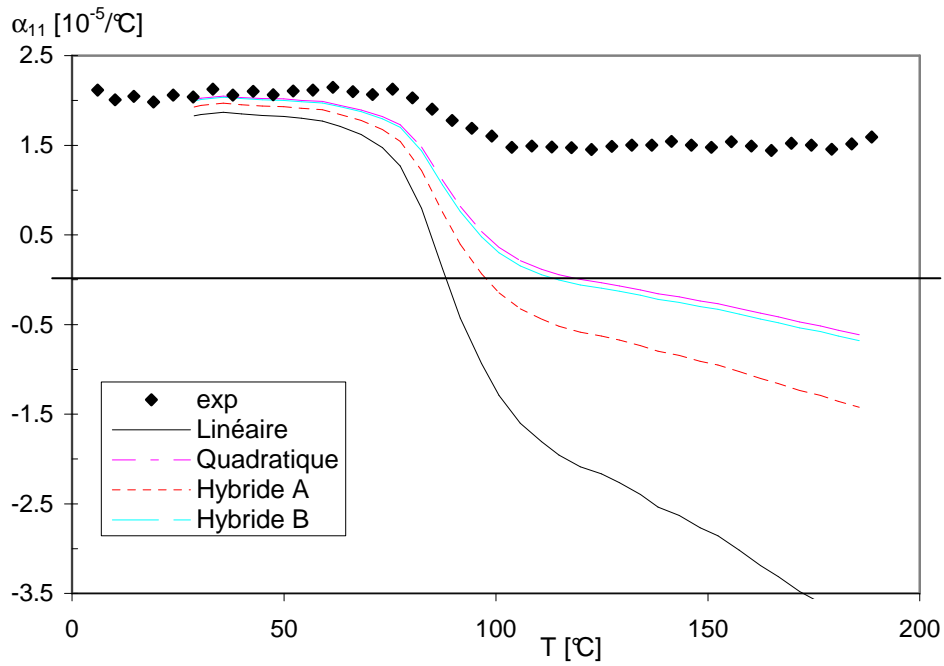
Il est intéressant de noter que la température augmente les différences entre les modèles, ce qui peut être un moyen de les distinguer, voire de les éliminer.

Contrairement à l'approche où on moyenne les souplesses (Figure 2.24), une diminution de  $\alpha_{11}$  avec la température est prédite cette fois, mais cette diminution est surestimée, si bien que des valeurs négatives inacceptables sont obtenues à hautes températures, quelle que soit l'approximation considérée, l'équation linéaire étant la pire de toutes : ces résultats semblent aberrants, puisque les deux phases (matrice et fibre) ont des coefficients de dilatation linéaires positifs. En revanche, l'hypothèse linéaire prédit un coefficient  $\alpha_{22}$  proche quantitativement des résultats expérimentaux (mais la tendance est mauvaise à hautes températures puisqu'elle prédit une diminution au lieu d'une augmentation) et toutes les autres approximations surestiment cette composante (d'autant plus que la température augmente). Enfin, toutes les hypothèses de fermeture se comportent de manière assez comparable pour prédire le coefficient  $\alpha_{33}$  et les résultats pourraient être acceptables, les meilleures prédictions étant obtenues avec l'approximation hybride de type A.

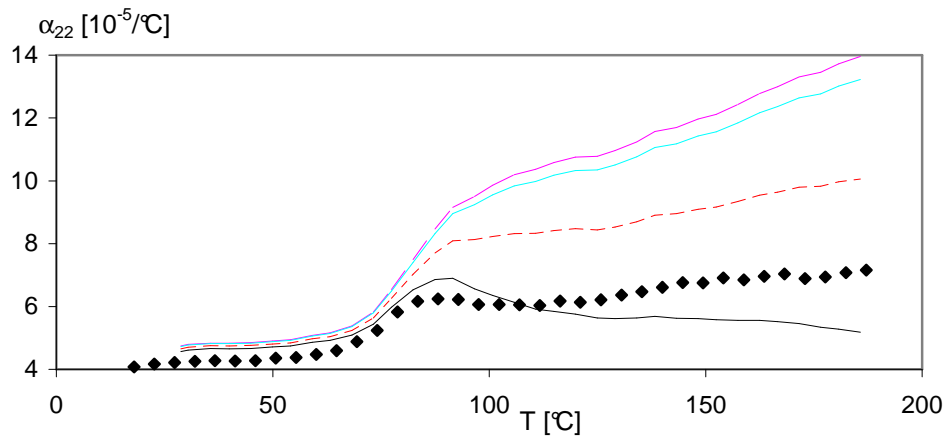
La différence entre les deux variantes de l'approximation hybride est plus significative pour les coefficients de dilatation thermique qu'elle ne l'était pour les modules d'Young : les deux types d'hypothèses engendrent des prédictions qui sont comprises entre celles faites avec l'équation linéaire et celle faite avec l'équation quadratique. On constate en particulier que les résultats avec l'équation hybride de type B sont très proches de ceux prédits avec l'hypothèse quadratique, et que ceux prédits avec l'équation hybride de type A tendent plutôt vers ceux prédits avec l'hypothèse linéaire.

Enfin, on remarque que l'utilisation de l'équation de fermeture linéaire, qui combinée à l'approche qui moyenne les rigidités paraissait être la meilleure pour prédire les modules élastiques, s'avère mauvaise pour les coefficients de dilatation, essentiellement à cause des valeurs largement négatives de  $\alpha_{11}$  à hautes températures.

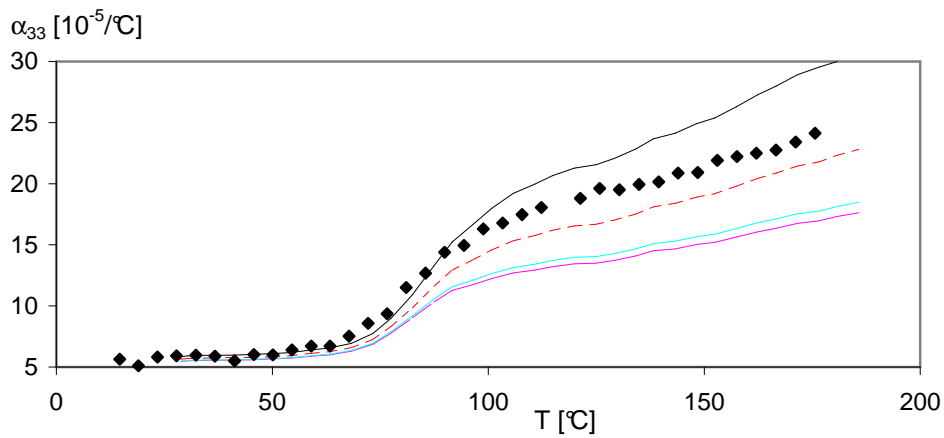
On a finalement l'impression qu'en moyennant les rigidités, bien que les tendances aillent dans le bon sens pour les 3 coefficients, aucune approximation ne parvient à fournir des résultats satisfaisants, en accord avec l'expérience.



a)



b)



c)

**Figure 2.25** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités, selon les trois axes du composite. Grade 1002, plaque de 1 mm

## b) Cas du grade 1002 - plaque de 3 mm d'épaisseur

Comme pour les plaques de 1 mm, nous allons prédire et comparer les modules élastiques (à 2 températures) et les coefficients de dilatation (entre 0 et 200°C).

### Prédiction des modules élastiques

Les 9 évaluations des modules élastiques  $E_1$  et  $E_2$  sont réunies avec les mesures expérimentales dans le tableau 2.7. Comme pour les plaques de 1 mm d'épaisseur, on remarque que les prédictions par la procédure en deux étapes qui moyenne les souplesses sous-estime très largement ces deux composantes, à basse comme à haute températures (en moyenne sur les 4 valeurs prédites, l'écart est supérieur à 40%). Des prédictions plus proches des valeurs expérimentales sont obtenues avec la procédure qui moyenne les rigidités et les meilleurs résultats apparaissent avec l'utilisation de l'équation linéaire : l'écart moyen est de 16.5%.

		exp.	Méthode directe Mori-Tanaka	Procédure en deux étapes							
				Moyenne des rigidités				Moyenne des souplesses			
				lin.	quad.	hyb.A	hyb.B	lin.	quad.	hyb.A	hyb.B
$T_{amb}$	$E_1$	10.91	11.41	9.81	8.79	9.58	9.00	8.53	7.98	8.37	8.06
	$E_2$	8.86	7.87	8.22	6.89	7.88	7.13	7.55	6.87	7.35	6.98
120 °C	$E_1$	3.25	3.67	2.58	1.76	2.51	1.95	1.23	1.08	1.19	1.10
	$E_2$	2.27	1.53	1.63	0.93	1.50	1.05	1.05	0.88	1.00	0.90

**Tableau 2.7** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions pour le grade 1002, plaque de 3 mm d'épaisseur

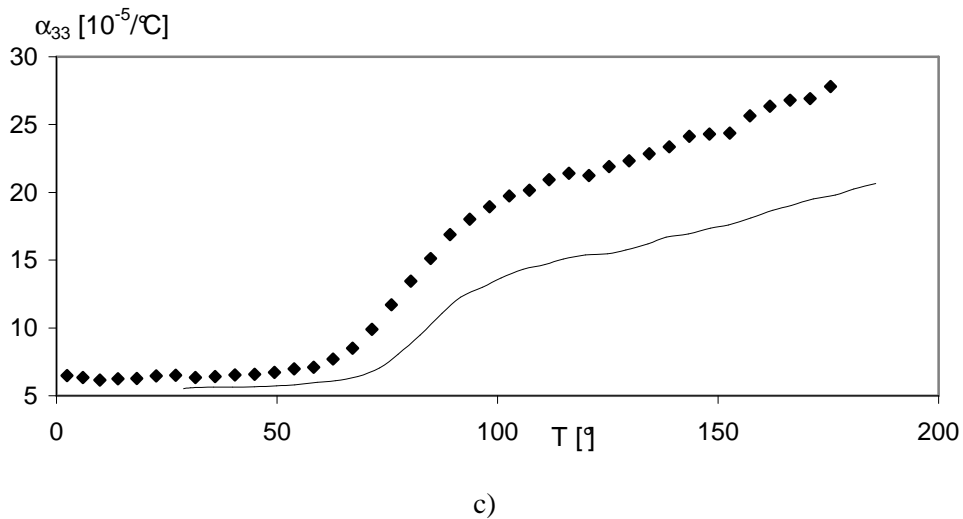
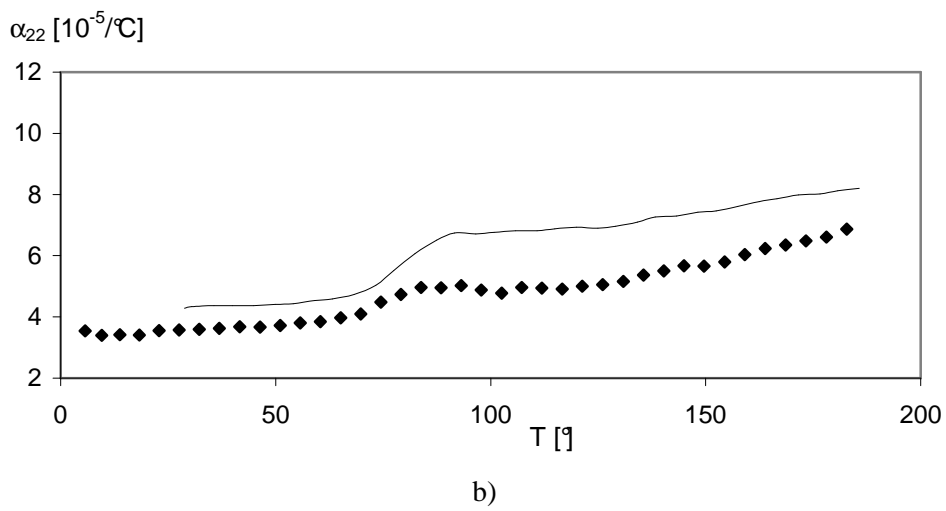
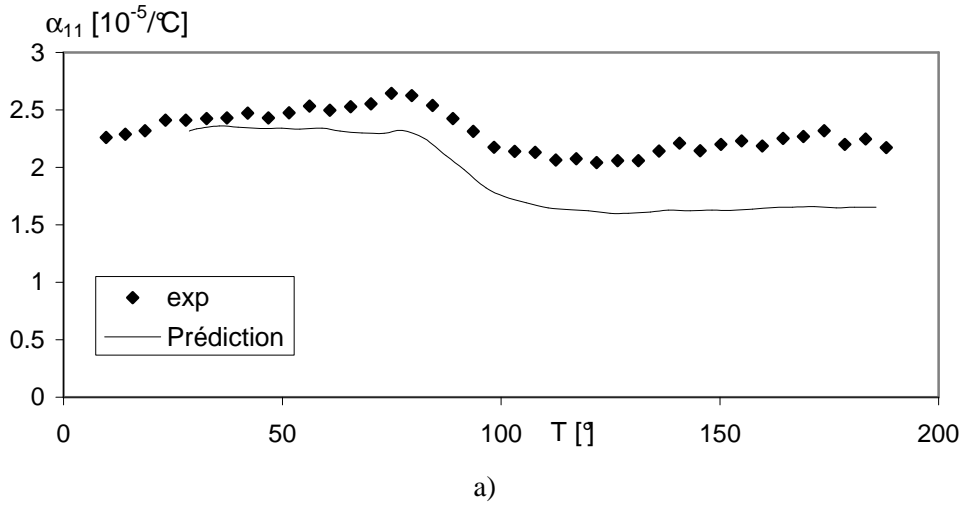
Incontestablement, les meilleures prédictions en élasticité sont réalisées par la méthode directe de Mori-Tanaka, en particulier à basse température :  $E_1$  est prédit avec seulement 4% d'écart à température ambiante et l'écart moyen sur les 2 composantes prédites aux 2 températures est de 15%. Regardons ce que chacun des 3 modèles prédit en terme de coefficients de dilatation.

### Prédiction des coefficients de dilatation

Les valeurs prédites par la méthode directe de Mori-Tanaka et les données expérimentales sont illustrées sur la figure 2.26.

On constate que qualitativement et quantitativement, l'accord avec l'expérience est très bon ; seule la composante  $\alpha_{33}$  tend à être sous-estimée par le modèle, surtout à haute température.





**Figure 2.26** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la méthode directe de Mori-Tanaka, selon les trois axes du composite. Grade 1002, plaque de 3 mm

Si on compare les prédictions déduites de la moyenne des souplesses (procédure en 2 étapes), on constate tout d'abord (Figure 2.27) que  $\alpha_{11}$  est surestimé et que la composante prédite croît avec la température, contrairement à la diminution mesurée expérimentalement ; l'écart avec l'expérience atteint 200% vers 180°C. Concernant les deux autres composantes, même si les tendances sont respectées ( $\alpha_{22}$  et  $\alpha_{33}$  augmentent avec la température), on constate que  $\alpha_{22}$  est surestimé alors que  $\alpha_{33}$  est largement sous-estimé et les écarts importants avec les données expérimentales ne cessent d'augmenter avec la température.

Enfin, si on s'intéresse aux résultats obtenus en moyennant les rigidités (Figure 2.28), on remarque comme pour les plaques de 1 mm que les tendances vont dans le bon sens pour  $\alpha_{11}$ , mais que des valeurs négatives sont obtenues au-delà de Tg.

Concernant les autres composantes, on est plus proche quantitativement des mesures expérimentales et des bons résultats sont obtenus en particulier pour  $\alpha_{33}$ , quelle que soit l'approximation.

Ainsi les prédictions obtenues pour les plaques de 3 mm sont comparables à celles obtenues avec les plaques de 1 mm. On constate que la méthode directe de Mori-Tanaka fournit des résultats très proches de l'expérience. Concernant la procédure en 2 étapes, l'approche qui consiste à moyenner les souplesses est mauvaise, tant qualitativement que quantitativement ; et l'approche qui consiste à moyenner les rigidités prédit correctement les tendances, mais aucune équation de fermeture ne semble parvenir à un accord quantitatif avec les données expérimentales en dilatation.

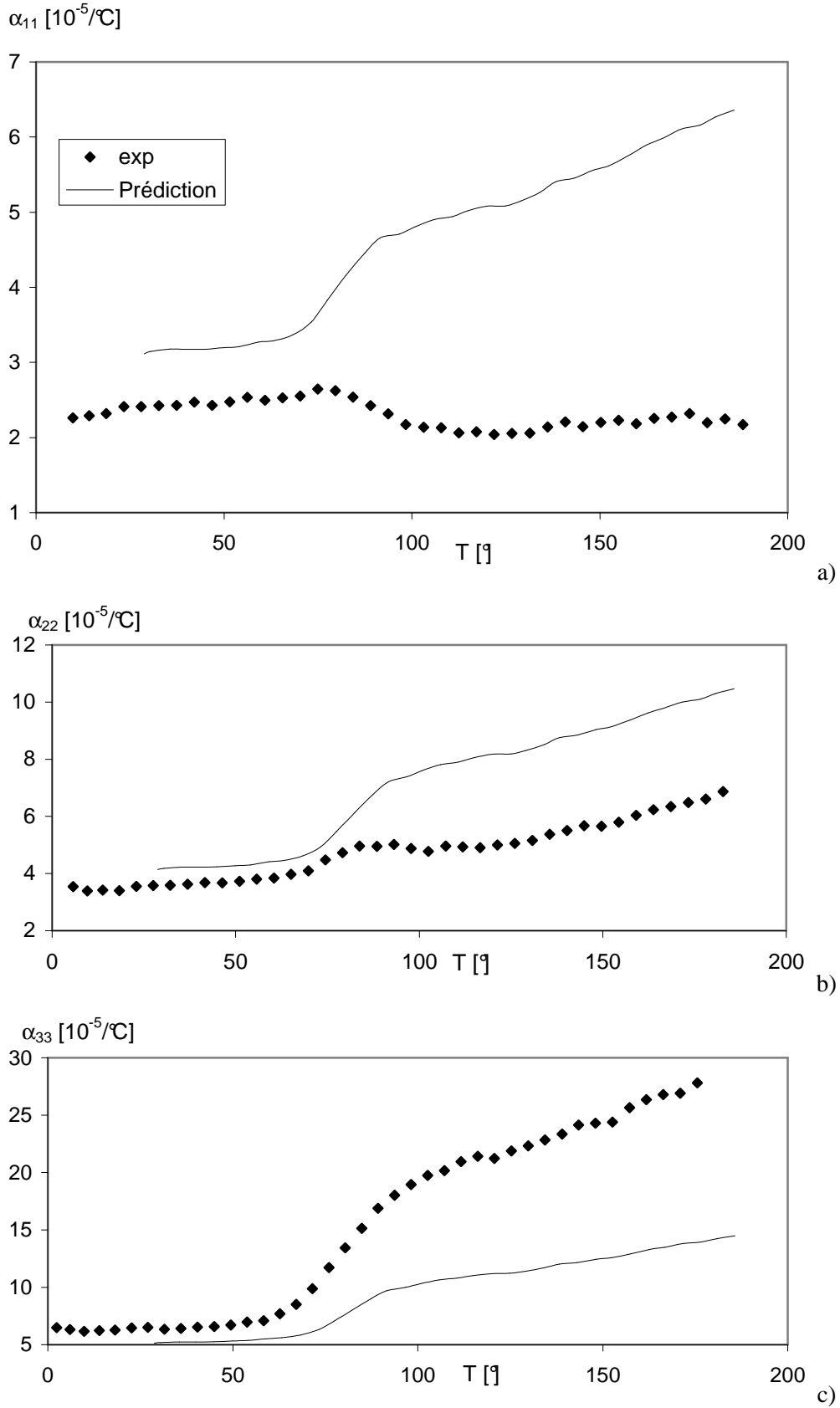
### c) Cas du grade 1022

#### Prédiction des modules élastiques

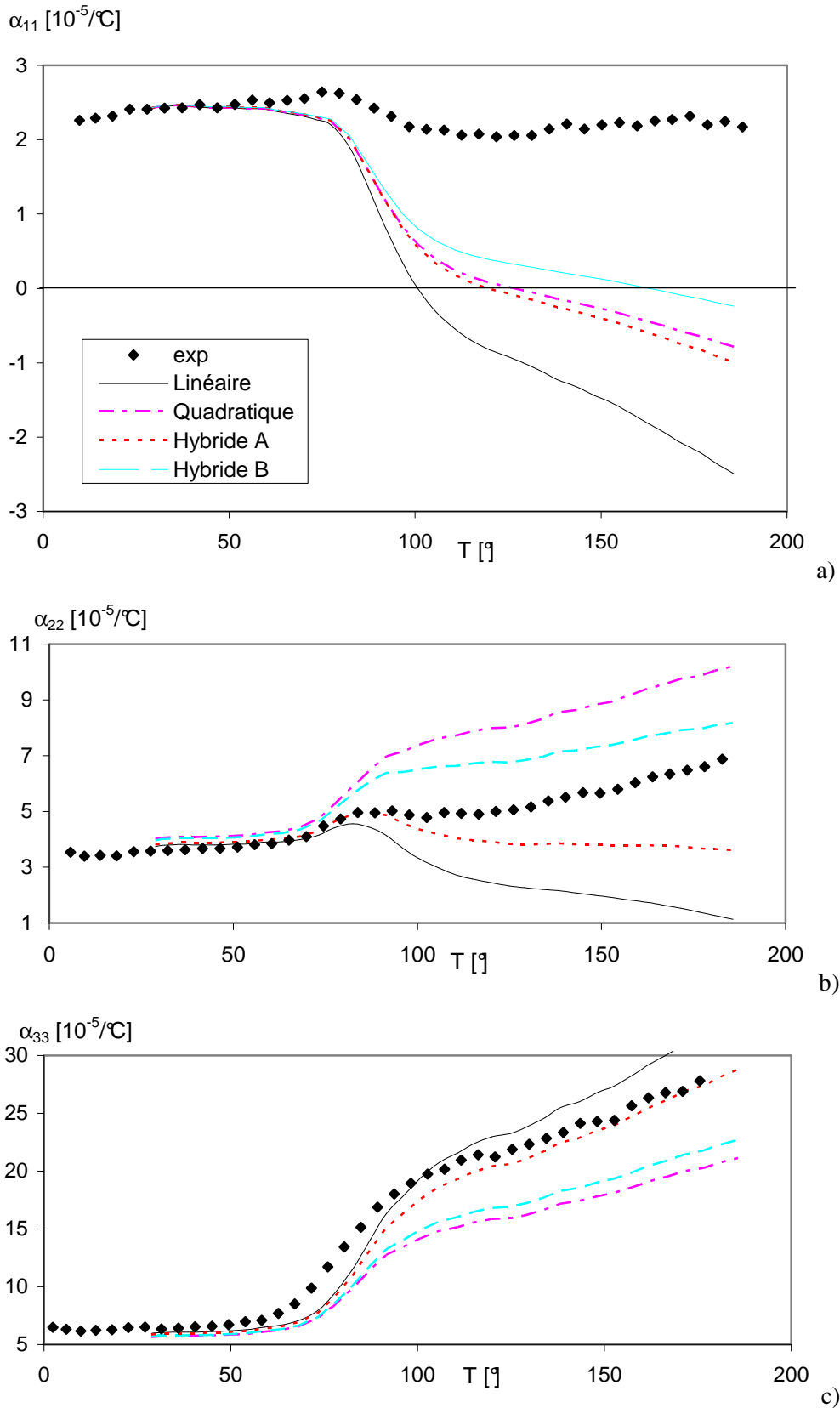
Pour le grade 1022, les essais de traction n'ont été réalisés qu'à température ambiante : les valeurs mesurées sont comparées aux valeurs prédites par les différents modèles dans le tableau 2.8 pour les plaques de 1 mm et 2.9 pour celles de 3 mm.

		exp.	Méthode directe Mori-Tanaka	Procédure en deux étapes							
				Moyenne des rigidités				Moyenne des souplesses			
				lin.	quad.	hyb.A	hyb.B	lin.	quad.	hyb.A	hyb.B
$T_{amb}$	$E_1$	19.62	19.61	15.67	15.64	15.81	15.71	12.41	12.62	12.51	12.60
	$E_2$	10.13	9.70	10.23	8.90	9.67	9.06	9.47	8.89	9.20	8.95

**Tableau 2.8** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions pour le grade 1022, plaque de 1 mm d'épaisseur



**Figure 2.27 :** coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les souplesses, selon les trois axes du composite. Grade 1002, plaque de 3 mm



**Figure 2.28 :** coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités, selon les trois axes du composite. Grade 1002, plaque de 3 mm

		exp.	Méthode directe Mori-Tanaka	Procédure en deux étapes							
				Moyenne des rigidités				Moyenne des souplesses			
				lin.	quad.	hyb.A	hyb.B	lin.	quad.	hyb.A	hyb.B
$T_{amb}$	$E_1$	16.60	17.41	14.51	12.49	14.10	12.97	11.59	10.71	11.33	10.86
	$E_2$	12.14	10.36	11.45	9.00	10.84	9.50	9.97	8.96	9.66	9.12

**Tableau 2.9** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions pour le grade 1022, plaque de 3 mm d'épaisseur

On constate encore une fois que les prédictions par la méthode directe de Mori-Tanaka sont satisfaisantes :  $E_1$  est prédit avec un écart de 0.04% et 4%, pour les plaques de 1 mm et 3 mm, respectivement, alors que  $E_2$  est prédit avec un écart de 4% et de 15%, respectivement.

En revanche, avec la procédure en 2 étapes, les écarts sont beaucoup plus importants :

- si on moyenne les souplesses,  $E_1$  et  $E_2$  sont sous-estimés, avec des écarts supérieurs à 35% et 24%, pour les plaques de 1 mm et 3 mm, respectivement ;
- si on moyenne les rigidités,  $E_1$  est sous-estimé (environ 20% d'écart), alors que  $E_2$  est proche de la valeur expérimentale. L'approximation linéaire est la plus réaliste, avec un écart moyen d'environ 10%.

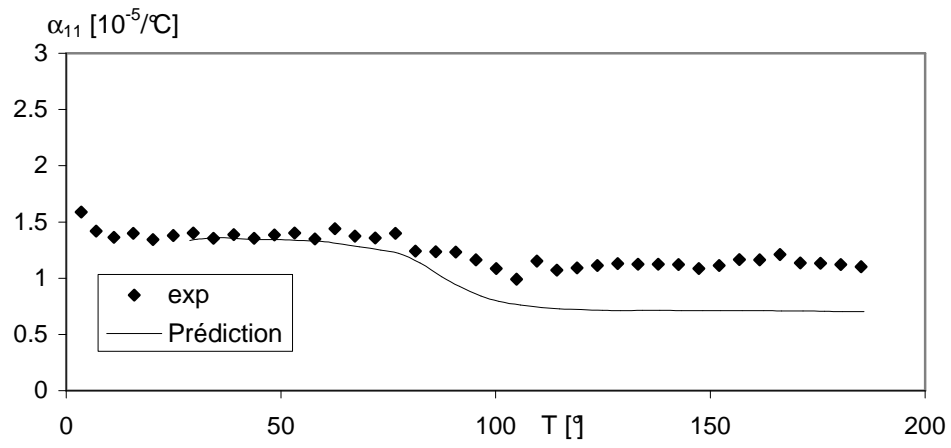
Regardons si ces tendances se confirment avec la prédiction des coefficients de dilatation.

### Prédiction des coefficients de dilatation

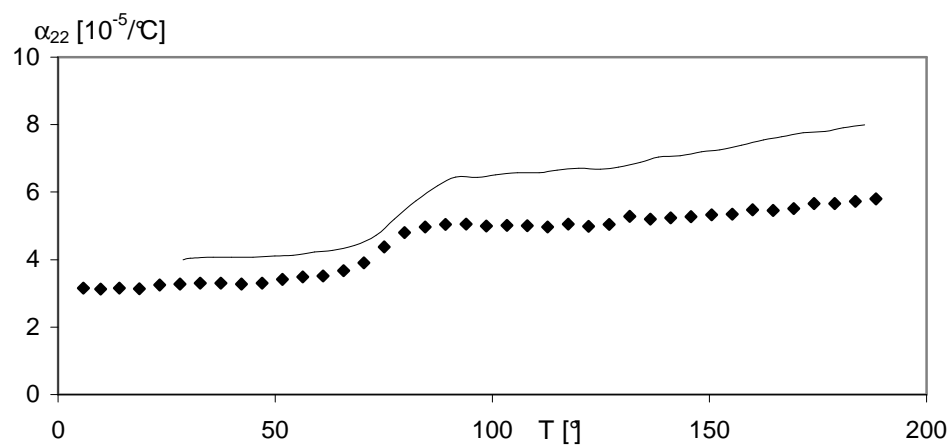
Les coefficients de dilatation ont été mesurés dans les directions 1 et 2 seulement ; la figure 2.29 superpose ces mesures aux prédictions déduites de la méthode directe de Mori-Tanaka pour les plaques de 1 mm et la figure 2.30 pour les plaques de 3 mm. Une fois encore les tendances expérimentales sont très bien décrites par le modèle et un très bon accord quantitatif apparaît, en particulier pour la composante  $\alpha_{11}$ .

Quand on compare les données expérimentales aux résultats obtenus en moyennant les souplesses (Figure 2.31 et 2.32), on voit qu'un écart très important se creuse à haute température et le  $\alpha_{11}$  prédit croît avec la température, contrairement au profil expérimental qui décroît.

Pour les plaques de 3 mm, la différence avec l'expérience pour  $\alpha_{11}$  est supérieure à 200% à 180°C ; pour la composante  $\alpha_{22}$ , bien que la tendance soit respectée, l'écart avec l'expérience est proche de 100% vers 180°C.

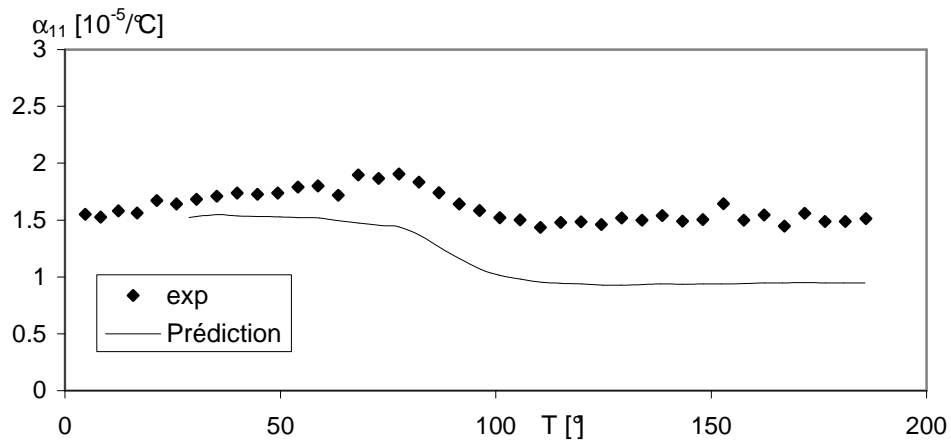


a)

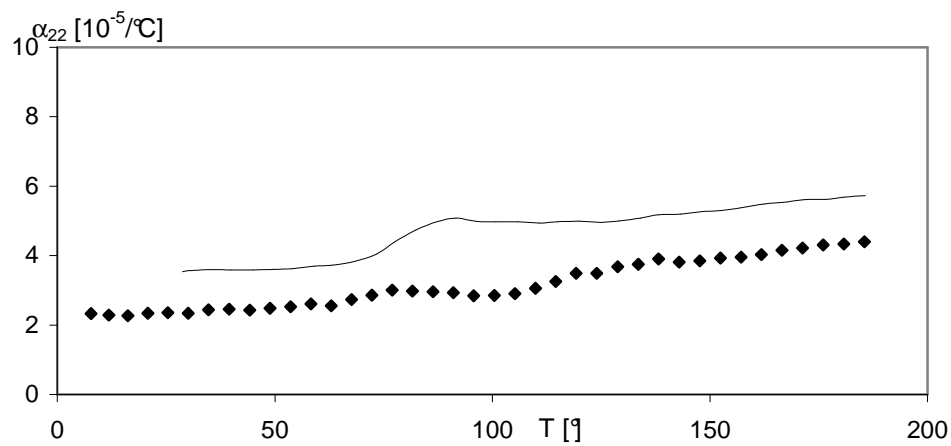


b)

**Figure 2.29** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la méthode directe de Mori-Tanaka, selon les axes 1 et 2 du composite. Grade 1022, plaque de 1 mm

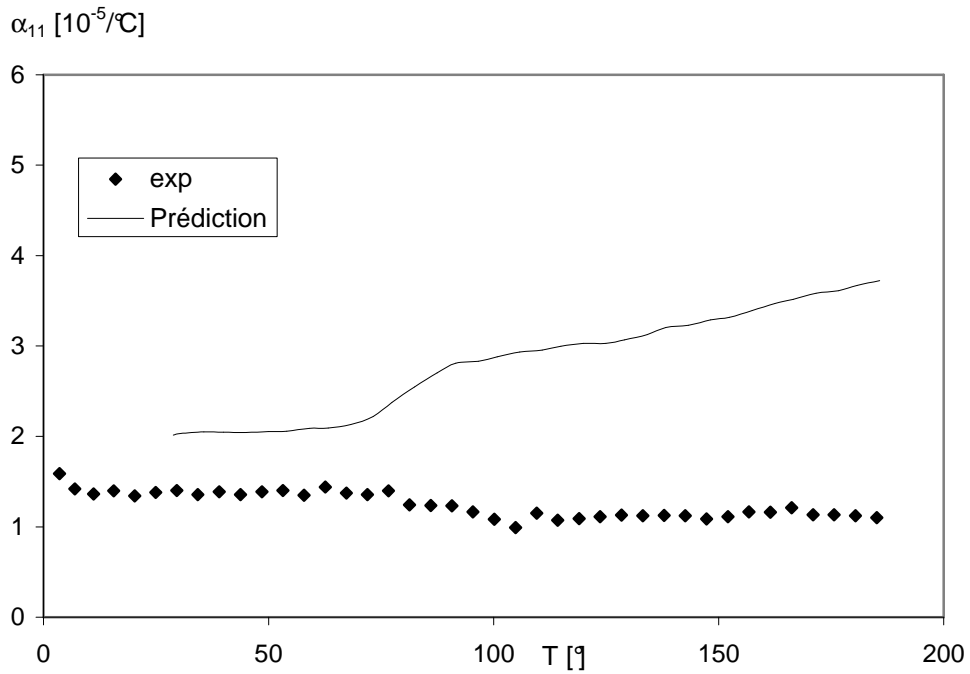


a)

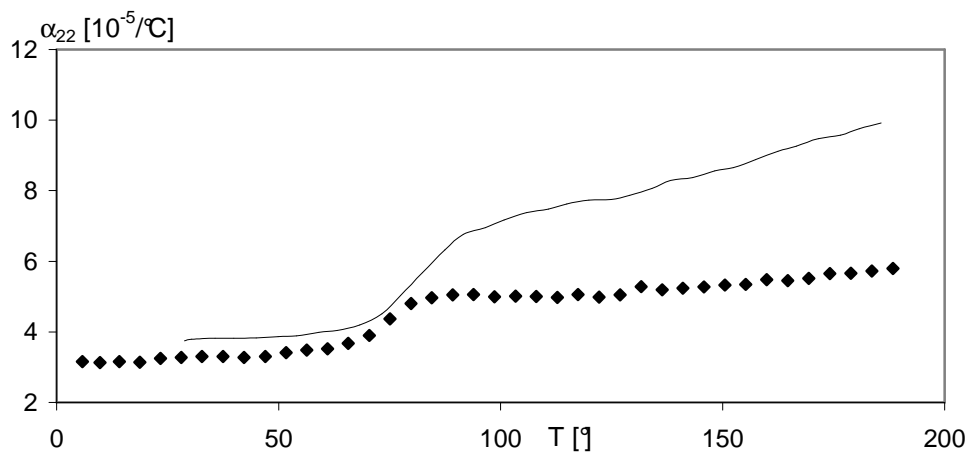


b)

**Figure 2.30** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la méthode directe de Mori-Tanaka, selon les axes 1 et 2 du composite. Grade 1022, plaque de 3 mm



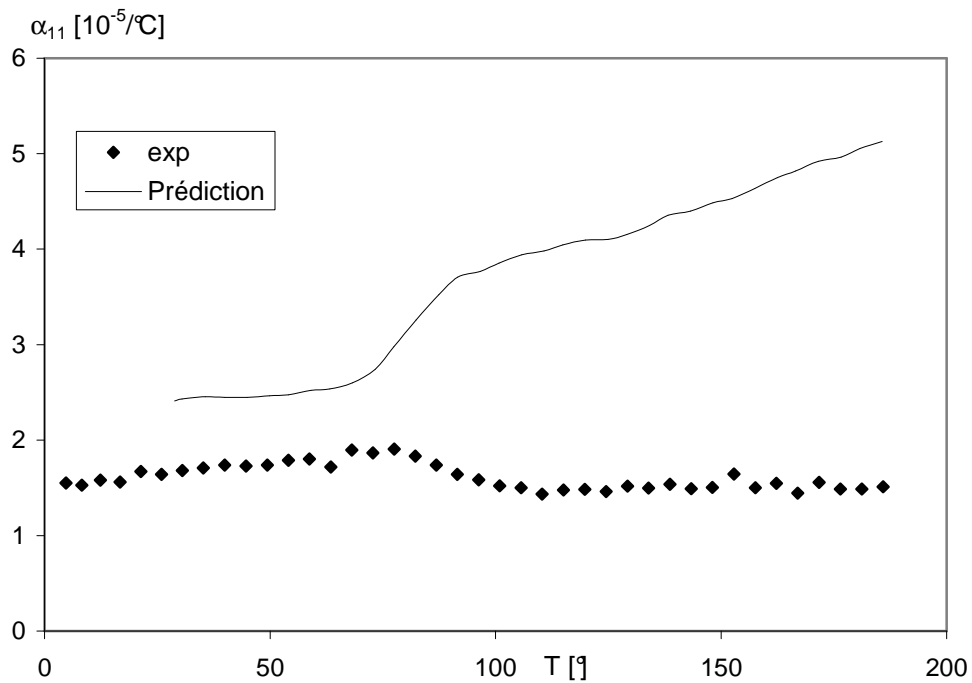
a)



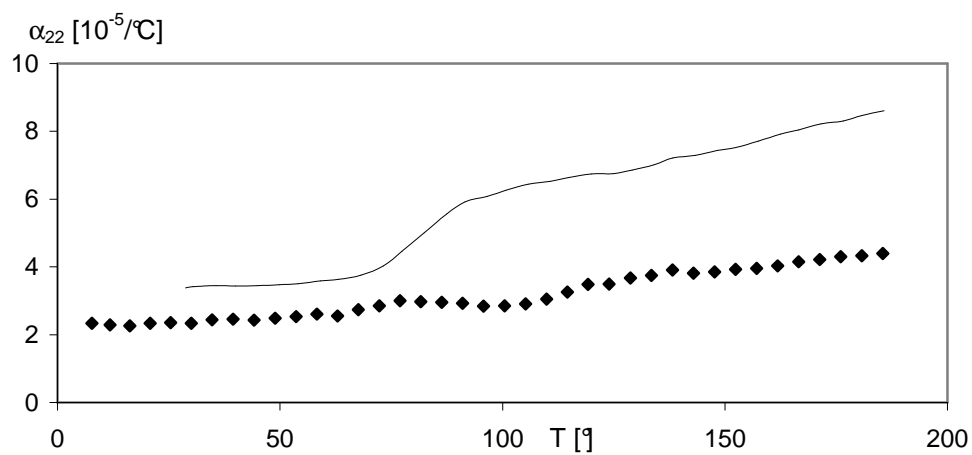
b)

**Figure 2.31** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les souplesses, selon les axes 1 et 2 du composite. Grade 1022, plaque de 1 mm





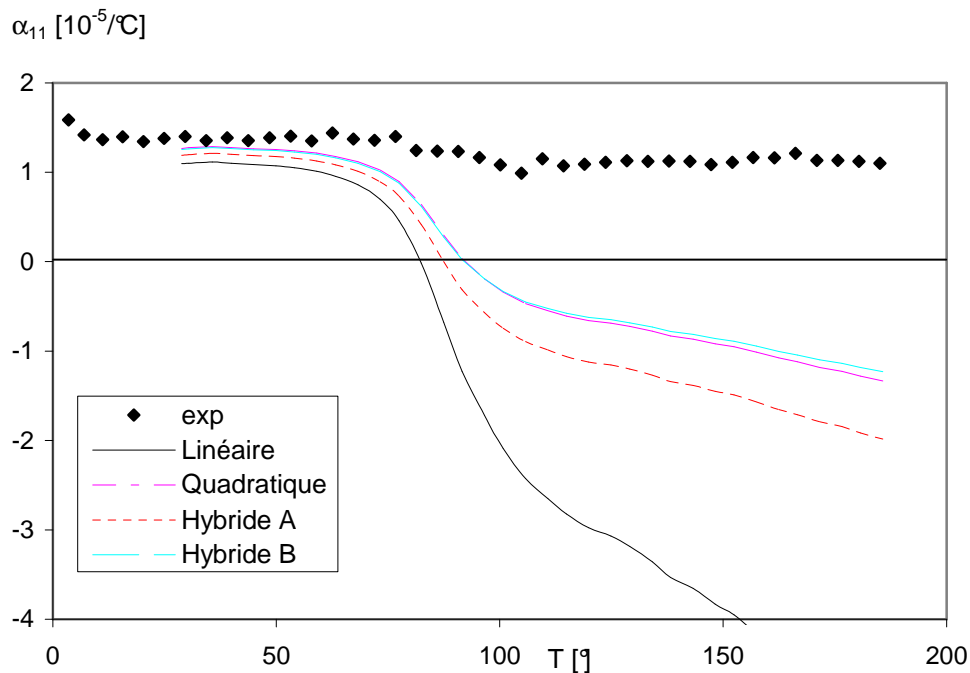
a)



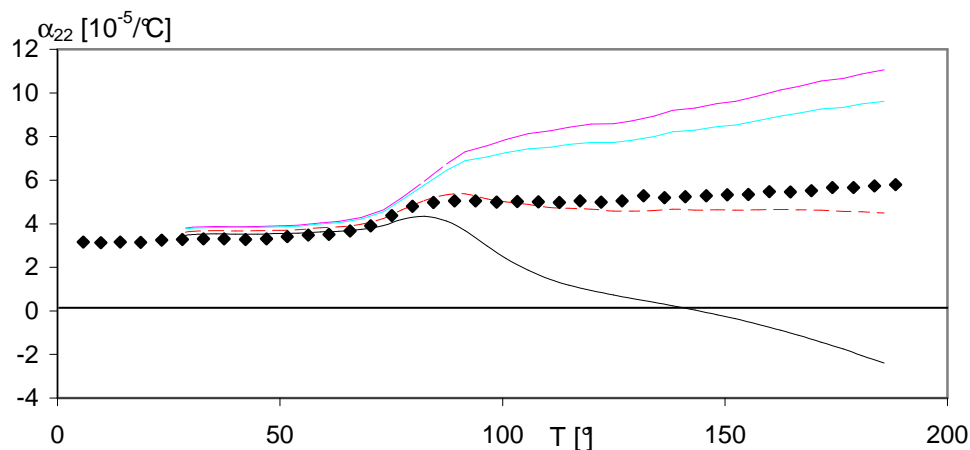
b)

**Figure 2.32** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les souplesses, selon les axes 1 et 2 du composite. Grade 1022, plaque de 3 mm

Enfin, les prédictions obtenues en moyennant les rigidités (Figure 2.33 et Figure 2.34) ont des variations correctes en fonction de la température ( $\alpha_{11}$  diminue et  $\alpha_{22}$  augmente), mais sont surestimées pour les deux composantes. Les pires prédictions sont apportées par l'approximation linéaire, qui semblait pourtant être la meilleure en élasticité, car non seulement le coefficient  $\alpha_{11}$  est négatif et a la plus faible valeur, mais en plus  $\alpha_{22}$  décroît avec la température, contrairement aux résultats expérimentaux ou à ceux obtenus avec les autres équations de fermeture.

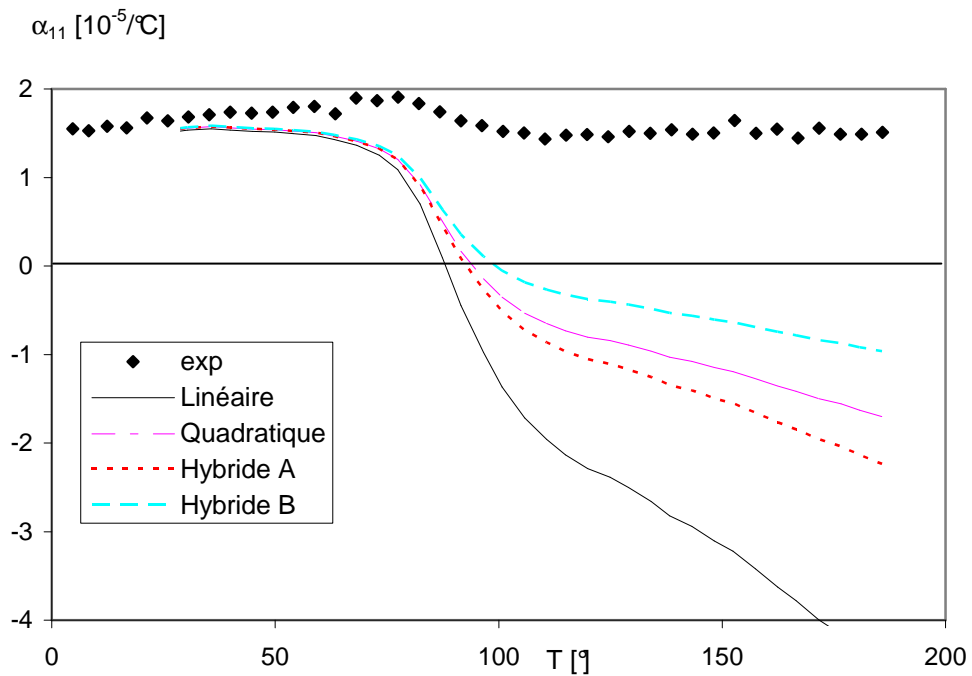


a)

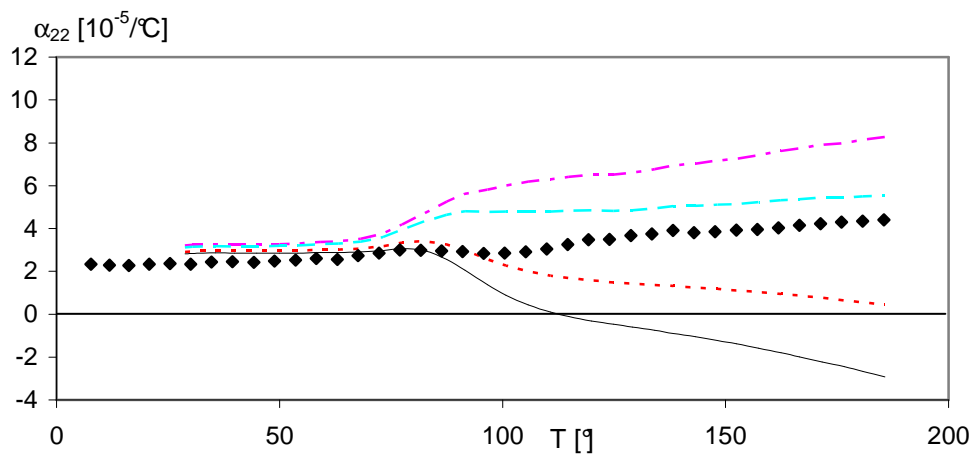


b)

**Figure 2.33** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités, selon les axes 1 et 2 du composite. Grade 1022, plaque de 1 mm



a)



b)

**Figure 2.34** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités, selon les axes 1 et 2 du composite. Grade 1022, plaque de 3 mm

#### d) Synthèse

La comparaison des valeurs expérimentales non seulement aux propriétés élastiques, mais aussi aux coefficients de dilatation sur une large gamme de température, définit une procédure sélective permettant de tester les différents modèles de prédiction.

Il en résulte notamment, dans le cas des matériaux composites renforcés de fibres courtes et injectés, que la méthode directe de Mori-Tanaka est capable de prédire les propriétés thermo-mécaniques du composite de façon satisfaisante, et ceci jusqu'à des taux de renforts de 50% en poids, soit plus de 30% en volume.

Si la procédure en deux étapes est utilisée, on a montré que les résultats obtenus en moyennant les rigidités et en moyennant les souplesses sont très différents : la 1<sup>ère</sup> approche conduit à des prédictions éloignées quantitativement des valeurs expérimentales, mais dont les allures sont semblables ; la 2<sup>nde</sup> approche prédit des écarts très importants avec l'expérience et même les tendances ne sont pas respectées (pour  $\alpha_{11}$  notamment). On peut préciser que les versions 2D des hypothèses de fermeture (Eq.2.75 avec pour coefficients 1/24 et 1/6 pour l'approximation linéaire ; Eq.2.79 pour les approximations hybrides) ont aussi été appliquées, puisque la composante  $a_{33}$  du tenseur d'orientation est faible (Partie 1) : ceci a été réalisé simplement en annulant les composantes appropriées de  $a_{ij}$  et  $a_{ijkl}$  et en amplifiant les éléments diagonaux  $a_{11}$  et  $a_{22}$  du tenseur d'ordre 2, tel que  $a_{11}+a_{22}=1$ . Cependant, les résultats obtenus ne changent pas de manière significative par rapport à ceux obtenus avec les versions 3D des approximations.

On peut en conclure que le modèle consistant à moyenner les souplesses n'est pas adapté dans notre cas, puisqu'il échoue à estimer correctement les propriétés thermo-mécaniques du composite, et on peut donc l'éliminer. Par contre, le modèle qui moyenne les rigidités dépasse le précédent, en particulier pour les coefficients de dilatation, dans le sens où il permet plus de flexibilité grâce au rôle joué par le tenseur d'ordre 4 : on peut espérer obtenir des prédictions correctes en trouvant l'approximation de fermeture adaptée. Cependant, aucune équation de fermeture testée ici (linéaire, quadratique, hybrides de type A et B) ne conduit à des résultats acceptables : l'approximation linéaire s'est avérée être la meilleure quand les propriétés élastiques seulement sont considérées, mais elle fournit des résultats inacceptables pour les coefficients de dilatation linéaire, en particulier selon la direction d'écoulement. Plutôt que de tester d'autres types d'équations de fermeture, nous préférons utiliser les tenseurs d'ordre 4 exacts pour conclure quant à la validité du modèle qui moyenne les rigidités. Les tenseurs d'orientation d'ordre 4 ont été mesurés expérimentalement (Partie 1), sans aucune approximation. On peut alors tester le modèle en utilisant directement les tenseurs d'ordres 2 et 4 mesurés, pour voir si de meilleures prédictions peuvent être obtenues : si c'est le cas, cela prouverait que c'est bien l'estimation du tenseur d'ordre 4, et non le modèle en deux étapes, qui est responsable des écarts avec l'expérience. Ce test est réalisé dans le paragraphe suivant et est appliqué aux grades 1002 et 1022, pour les plaques de 1 mm et 3 mm.

### 3.2 Validation de la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités

Dans cette partie, seule la procédure en deux étapes qui consiste à moyenner les rigidités est testée. Les tenseurs d'ordre 2 et d'ordre 4, mesurés expérimentalement et donnés dans la Partie 1, sont directement utilisés dans les équations 2.46 (pour les modules élastiques) et 2.80 (pour les coefficients de dilatation). Aucune approximation n'est ainsi faite sur le tenseur  $[a_4]$ , qui est considéré comme exact. Les résultats des nouvelles prédictions sont comparés ci-dessous aux valeurs expérimentales et pour comparaison, les bons résultats obtenus précédemment avec la méthode directe de Mori-Tanaka sont également montrés.

#### a) Cas du grade 1002

Les nouvelles prédictions de modules élastiques à température ambiante et à 120°C sont montrées dans le tableau 2.10 pour les plaques de 1 mm et le tableau 2.11 pour celles de 3 mm.

		exp	Moyenne des rigidités avec $[a_{ijkl}]_{exp}$	Ecart avec expérience [%]	Méthode directe Mori-Tanaka	Ecart avec expérience [%]
$T_{amb}$	$E_1$	11.80	12.18	3	12.52	6
	$E_2$	7.22	7.76	7	7.49	4
120 °C	$E_1$	3.74	4.18	12	4.32	16
	$E_2$	1.26	1.45	15	1.26	0

**Tableau 2.10** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions en utilisant le tenseur d'orientation d'ordre 4 expérimental. Grade 1002, plaque de 1 mm d'épaisseur

		exp	Moyenne des rigidités avec $[a_{ijkl}]_{exp}$	Ecart avec expérience [%]	Méthode directe Mori-Tanaka	Ecart avec expérience [%]
$T_{amb}$	$E_1$	10.91	10.74	2	11.41	5
	$E_2$	8.86	8.56	3	7.87	11
120 °C	$E_1$	3.25	3.34	3	3.67	13
	$E_2$	2.27	1.99	13	1.53	32

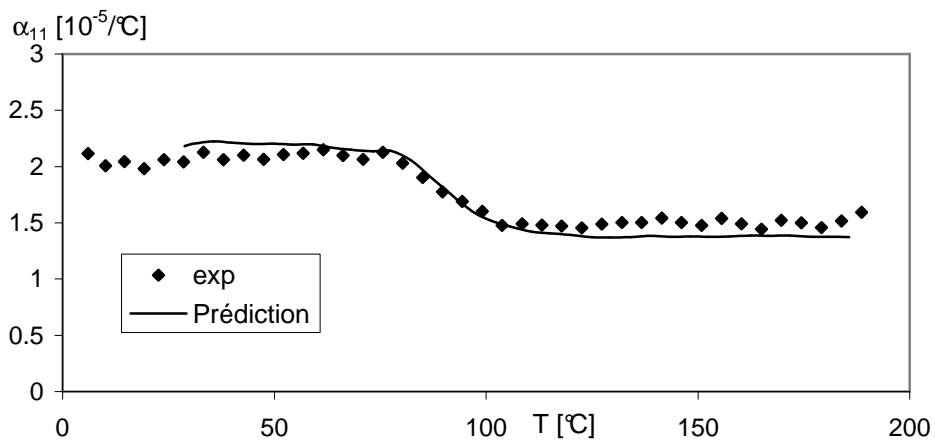
**Tableau 2.11** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions en utilisant le tenseur d'orientation d'ordre 4 expérimental. Grade 1002, plaque de 3 mm d'épaisseur

Les écarts avec l'expérience sont quantifiés pour l'approche qui moyenne les rigidités et pour la méthode directe de Mori-Tanaka. Il en résulte une nette amélioration des résultats par rapport à l'utilisation des équations de fermeture et par rapport à la méthode directe de Mori-Tanaka, la composante  $E_1$  est beaucoup mieux estimée, à basse comme à haute température. En moyenne sur les 4 composantes prédites, un écart de 9% est obtenu par l'utilisation du tenseur d'ordre 4 expérimental pour les plaques de 1 mm ; cet écart est de 5% pour les plaques de 3 mm.

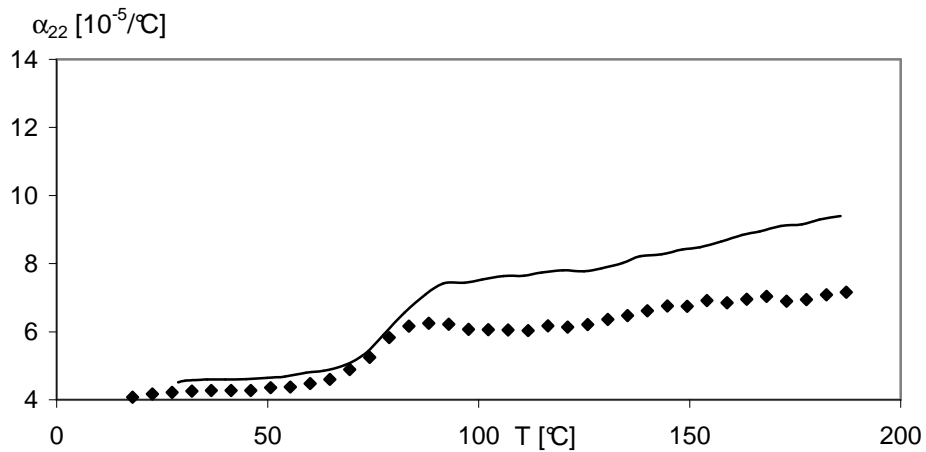
Pour confirmer nos affirmations concernant l'inadéquation de l'approche qui moyenne les souplesses, nous l'avons testé avec le tenseur d'orientation d'ordre 4 expérimental, juste dans le cas du grade 1002 et d'une plaque de 1 mm : on a obtenu  $E_1 = 10.56GPa$  et  $E_2 = 7.35GPa$  à température ambiante, soit un écart avec l'expérience de 11% et 2%, respectivement ; et à 120°C, on a obtenu  $E_1 = 1.90GPa$  et  $E_2 = 1.03GPa$ , ce qui correspond à un écart de 49% et 18%, respectivement. On constate bien que la composante  $E_1$  est trop largement sous-estimée et en moyenne sur les 4 composantes, on mesure un écart de 20% (plus du double qu'en moyennant les rigidités).

Les résultats encourageants en élasticité sont confirmés par la prédiction des coefficients de dilatation, comme le montrent les figures 2.35 et 2.36. Les valeurs négatives obtenues avec les 4 équations de fermeture testées ont disparu et un très bon accord quantitatif est obtenu avec l'expérience, surtout pour  $\alpha_{11}$ . Les résultats obtenus sont mêmes meilleurs qu'avec la procédure directe de Mori-Tanaka et cela est particulièrement visible au-delà de  $T_g$ , puisque l'écart est moindre avec les nouvelles prédictions. Cependant, on notera que la composante  $\alpha_{33}$  tend toujours à être sous-estimée à haute température, tant pour les plaques de 1 mm que pour celles de 3 mm.

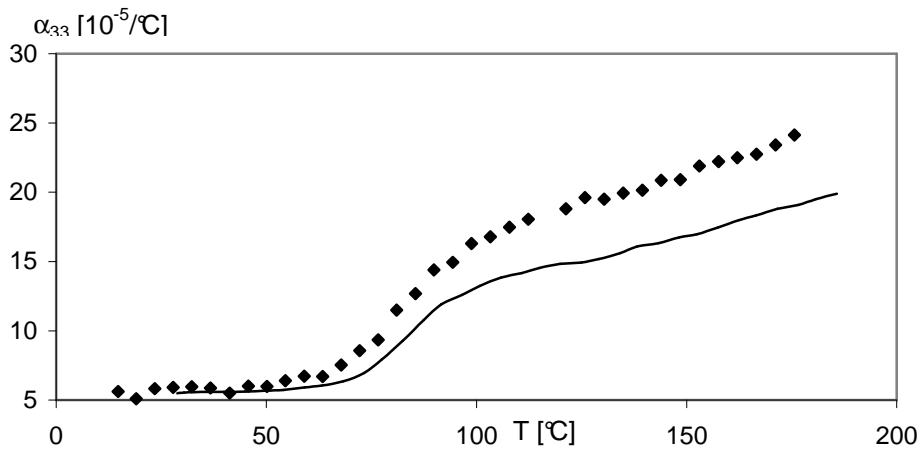
Cet ensemble de bons résultats indique que la procédure en deux étapes peut conduire à des prédictions précises si les rigidités sont moyennées et si on dispose d'une bonne description de la distribution d'orientation. Cependant, aucune des 4 équations de fermeture considérées précédemment ne permettait de décrire l'orientation correctement, puisqu'elles conduisaient toutes à des résultats insatisfaisants. Mais avant d'en tirer des conclusions, il est préférable de vérifier au préalable que ces résultats se confirment pour un taux plus important de fibres, soit pour le grade 1022.



a)

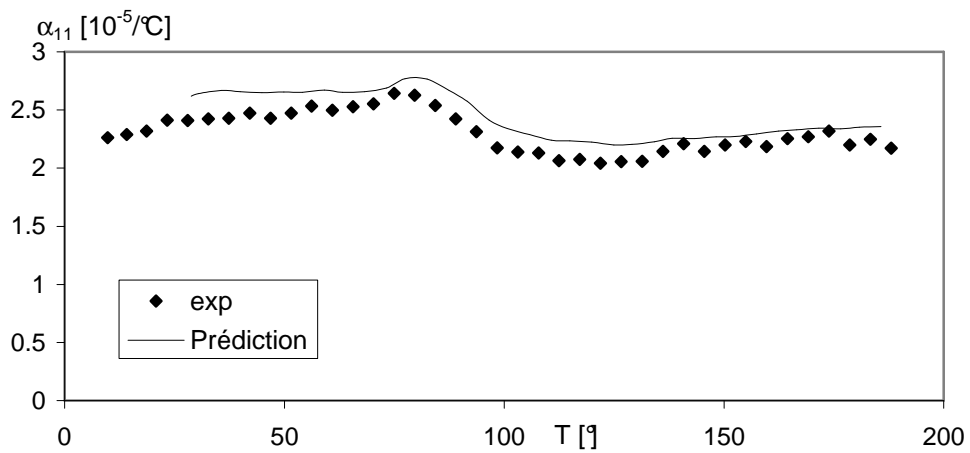


b)

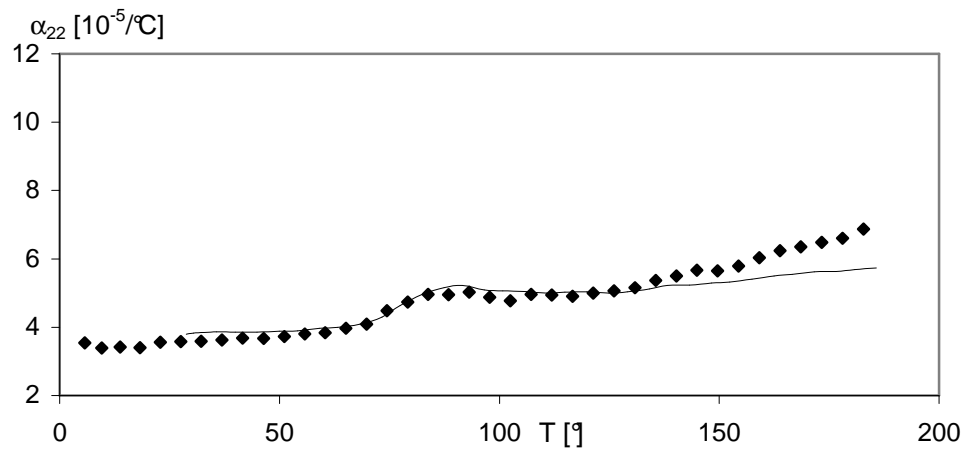


c)

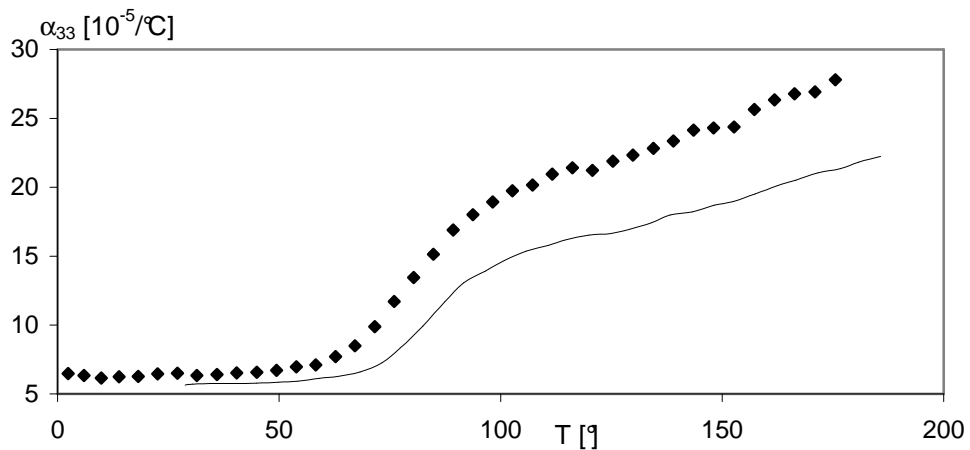
**Figure 2.35** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités et avec le tenseur d'orientation  $[a_4]$  mesuré expérimentalement, selon les 3 axes du composite. Grade 1002, plaque de 1 mm



a)



b)



c)

**Figure 2.36 :** coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités et avec le tenseur d'orientation  $[a_4]$  mesuré expérimentalement, selon les 3 axes du composite. Grade 1002, plaque de 3 mm



## b) Cas du grade 1022

Pour un taux de fibres plus important, les observations faites pour le grade 1002 restent valables. En effet, les modules longitudinal et transversal prédits à température ambiante sont réunis dans le tableau 2.12 pour les plaques de 1 mm et le tableau 2.13 pour celles de 3 mm, où ils sont comparés aux valeurs expérimentales.

		exp	Moyenne des rigidités avec $[a_{ijkl}]_{\text{exp}}$	Ecart avec expérience [%]	Méthode directe Mori-Tanaka	Ecart avec expérience [%]
$T_{\text{amb}}$	$E_1$	19.62	18.82	4	19.61	0
	$E_2$	10.13	11.11	10	9.70	4

**Tableau 2.12** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions en utilisant le tenseur d'orientation d'ordre 4 expérimental. Grade 1022, plaque de 1 mm d'épaisseur

		exp	Moyenne des rigidités avec $[a_{ijkl}]_{\text{exp}}$	Ecart avec expérience [%]	Méthode directe Mori-Tanaka	Ecart avec expérience [%]
$T_{\text{amb}}$	$E_1$	16.60	16.51	1	17.41	5
	$E_2$	12.14	12.25	1	10.36	15

**Tableau 2.13** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions en utilisant le tenseur d'orientation d'ordre 4 expérimental. Grade 1022, plaque de 3 mm d'épaisseur

Pour les plaques de 1 mm, on constate que les prédictions sont nettement améliorées par rapport à l'utilisation des équations de fermeture : l'équation linéaire, qui était la plus précise en élasticité, estimait les modules avec une erreur moyenne de 11% ; avec le tenseur expérimental  $[a_4]_{\text{exp}}$ , cet écart passe à 7%. Cependant, on est dans ce cas moins un peu précis qu'avec la méthode directe de Mori-Tanaka (écart moyen de 2%).

Pour les plaques de 3 mm, le tableau 2.13 montre que les modules élastiques sont parfaitement bien prédits en moyennant les rigidités et en utilisant le tenseur  $[a_4]_{\text{exp}}$ , puisque  $E_1$  et  $E_2$  sont estimés avec une erreur de 1% seulement à température ambiante, ce qui est bien meilleur qu'avec la méthode directe de Mori-Tanaka.

Les prédictions des coefficients de dilatation sont incontestablement les meilleures avec l'utilisation du tenseur expérimental  $[a_4]_{\text{exp}}$  (Figures 2.37 et 2.38), quasiment plus précises d'ailleurs qu'avec la

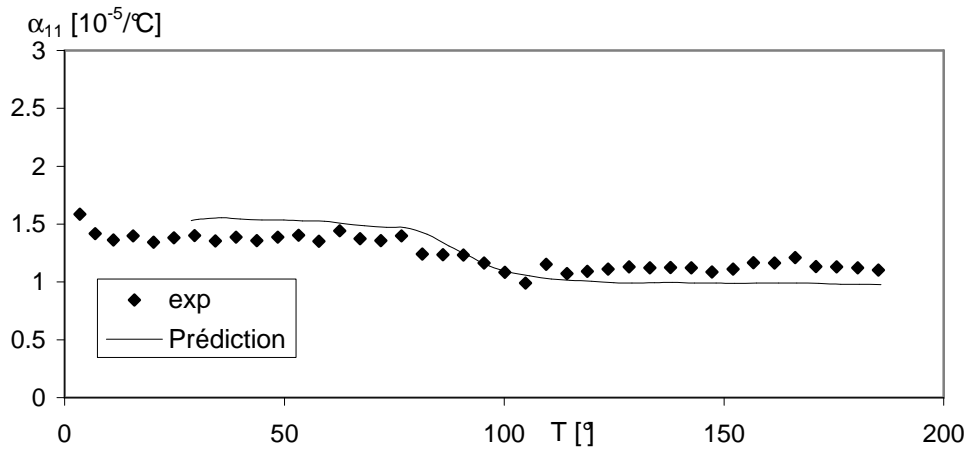
méthode directe de Mori-Tanaka (Figure 2.29 pour les plaques de 1 mm et 2.30 pour celles de 3 mm), surtout à haute température. On mesure par exemple à 185°C, pour les plaques de 1 mm, un écart avec l'expérience de 5% pour la composante  $\alpha_{22}$ .

### c) Synthèse

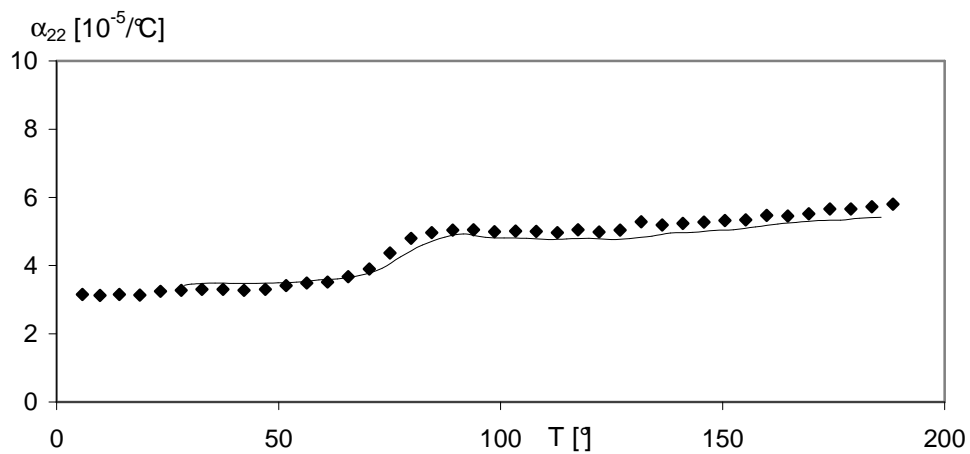
La procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités a été testée 4 fois avec succès, lorsque le tenseur d'orientation d'ordre 4 utilisé est mesuré expérimentalement et n'est pas déterminé par une équation de fermeture. Dans ce cas, on constate que les modules sont nettement améliorés, surtout pour les plaques de 3 mm, par rapport à l'utilisation d'une approximation de fermeture. Concernant les coefficients de dilatation, les tendances s'avèrent correctes pour les 3 composantes ( $\alpha_{11}$  diminue avec la température et reste positif ;  $\alpha_{22}$  et  $\alpha_{33}$  diminuent) et les prédictions sont très proches des valeurs expérimentales, sur un éventail de températures allant de l'ambiante à environ 190°C. Ces prédictions sont d'ailleurs plus précises qu'avec la méthode directe de Mori-Tanaka.

D'une manière générale, un certain nombre de conclusions peuvent alors ressortir :

- (i) La procédure en deux étapes conduit à des prédictions précises si les rigidités (plutôt que les souplesses) sont moyennées et que le tenseur d'orientation d'ordre 4 est bien estimé ou est connu exactement (mesure expérimentale).
- (ii) La procédure en deux étapes, qui applique une opération de moyenne dans l'espace sur un composite unidirectionnel contenant le même taux de fibres que le composite désorienté, est capable de prédire avec précision les propriétés thermo-mécaniques d'un composite chargé de fibres courtes : on en déduit que le caractère trop rigide du composite unidirectionnel associé est donc acceptable, car il est équilibré pendant la 2<sup>ème</sup> étape (c'est-à-dire pendant l'opération de moyenne des rigidités, qui correspond en fait à une borne de Voigt).
- (iii) Un bon accord a été observé avec les résultats expérimentaux mesurés sur des composites polyarylamide / fibres de verre injectés, à basse comme à haute température, ce qui signifie pour une large gamme de contrastes entre les propriétés des deux phases.
- (iv) Aucune des équations de fermeture testées ici n'a conduit à de bons résultats, alors que l'utilisation du tenseur d'ordre 4 expérimental a généré des résultats très précis : on en déduit qu'aucune des hypothèses de fermeture considérée (linéaire, quadratique et hybrides) n'est capable de décrire correctement l'état d'orientation des fibres.
- (v) Un enjeu à ce stade consiste certainement en l'amélioration de l'estimation du tenseur d'orientation d'ordre 4, à partir de celui d'ordre 2 : cela permettrait de combiner l'efficacité des logiciels de simulation (qui fournissent le tenseur d'ordre 2) avec de meilleures prédictions des propriétés thermo-mécaniques des composites.

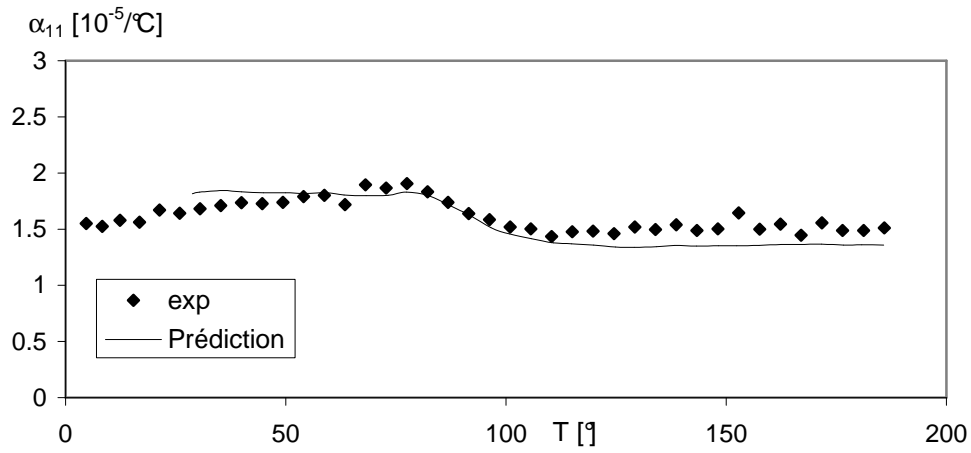


a)

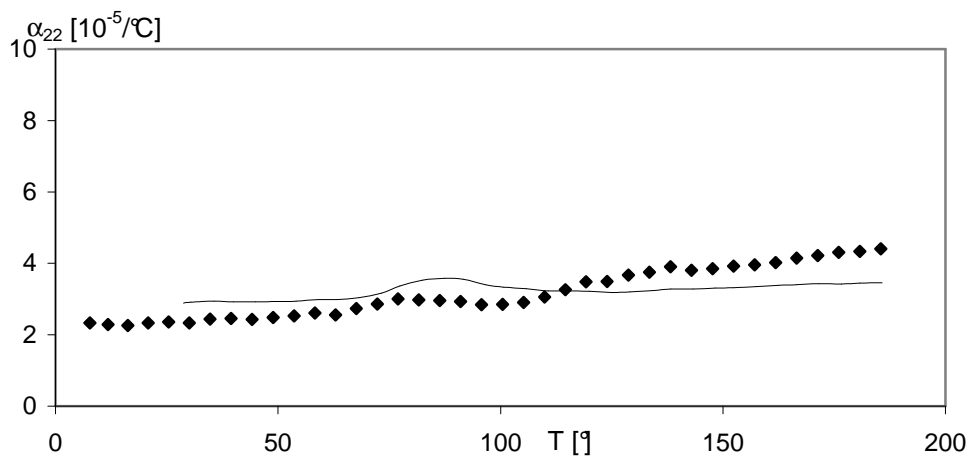


b)

**Figure 2.37** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités et avec le tenseur d'orientation  $[a_4]$  mesuré expérimentalement, selon les axes 1 et 2 du composite. Grade 1022, plaque de 1 mm



a)



b)

**Figure 2.38** : coefficients de dilatation mesurés (symboles) et prédits par la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités et avec le tenseur d'orientation  $[a_4]$  mesuré expérimentalement, selon les axes 1 et 2 du composite. Grade 1022, plaque de 3 mm

### 3.3 Amélioration de l'estimation du tenseur d'orientation d'ordre 4

Nous avons réalisé dans le paragraphe précédent qu'aucune estimation du tenseur d'ordre 4, via l'utilisation des équations de fermeture considérées, n'était capable de décrire l'état d'orientation des fibres de manière correcte. Afin d'améliorer l'évaluation de  $[a_4]$ , nous proposons une solution qui repose sur la forme de la distribution d'orientation. En effet, si on s'attarde un peu plus sur les résultats d'orientation mesurés dans la partie 1, on peut remarquer que globalement dans toute l'épaisseur, la forme de la distribution est la même : en particulier, la distribution de l'angle  $\theta'$  semble symétrique et centrée sur la valeur  $\theta' = 90^\circ$ , et la distribution de l'angle  $\phi'$  semble symétrique par rapport à la direction d'écoulement (direction 1, pour laquelle  $\phi' = 0^\circ$ ). On peut alors imaginer qu'à partir d'une forme constante de la distribution d'orientation et à partir des informations issues d'un tenseur d'ordre 2, on puisse en déduire une approximation du tenseur d'ordre 4 (et même d'ordres supérieurs).

#### a) Principe

Nous avons évoqué dans le paragraphe 1.1-b de la partie 1 qu'il pouvait être utile de disposer d'une fonction continue capable de décrire les variations expérimentales de la fonction de distribution d'orientation : appelons  $f(\theta', \phi')$  une telle fonction, caractérisée par un certain nombre de paramètres  $\lambda_i$  à déterminer ; les angles  $\theta'$  et  $\phi'$  étant définis par rapport au repère d'injection (1,2,3). Une fois que les paramètres  $\lambda_i$  sont identifiés, alors la fonction  $f$  est complètement caractérisée et la fonction de distribution d'orientation associée peut être calculée :

$$\psi(\theta', \phi') = \frac{f(\theta', \phi')}{\iint f(\theta', \phi') \sin \theta' d\theta' d\phi'} \quad (2.111)$$

avec  $\int_{\Omega} \psi(\theta', \phi') d\Omega = 1$  où  $\Omega$  est une sphère unitaire et  $d\Omega = \sin \theta' d\theta' d\phi'$ .

Si on connaît le tenseur d'ordre 2 correspondant à cette distribution (tenseur donné par exemple par un logiciel de simulation de l'injection), alors il sera possible de déterminer numériquement les paramètres  $\lambda_i$  à partir des expressions des composantes du tenseur d'ordre 2, soit des équations suivantes :

$$\begin{cases}
a_{11} = \iint \psi(\theta', \phi') \sin^2(\theta') \cos^2(\phi') \sin \theta' d\theta' d\phi' \\
a_{22} = \iint \psi(\theta', \phi') \sin^2(\theta') \sin^2(\phi') \sin \theta' d\theta' d\phi' \\
a_{33} = \iint \psi(\theta', \phi') \cos^2(\theta') \sin \theta' d\theta' d\phi' \\
a_{12} = \iint \psi(\theta', \phi') \sin^2(\theta') \cos(\phi') \sin(\phi') \sin \theta' d\theta' d\phi' \\
a_{13} = \iint \psi(\theta', \phi') \sin(\theta') \cos(\theta') \cos(\phi') \sin \theta' d\theta' d\phi' \\
a_{23} = \iint \psi(\theta', \phi') \sin(\theta') \cos(\theta') \sin(\phi') \sin \theta' d\theta' d\phi'
\end{cases} \quad (2.112)$$

Notons que  $a_{11}$ ,  $a_{22}$ , et  $a_{33}$  ne sont pas indépendants, puisqu'on a la relation :  $a_{11} + a_{22} + a_{33} = 1$ .

On peut préciser aussi que si le repère d'injection correspond au repère principal du matériau et que la distribution est symétrique par rapport à  $\theta'$  et  $\phi'$ , alors les composantes hors diagonale mesurées expérimentalement doivent valoir :  $a_{12} = a_{13} = a_{23} = 0$ .

Les propriétés mécaniques du composite sont alors calculées à partir de l'équation 2.45 :

$$\mathbf{C} = \int_{\Omega} \mathbf{C}^{UD}(\theta', \phi') \psi(\theta', \phi') d\Omega \quad (2.45)$$

où chaque composante du tenseur  $\mathbf{C}^{UD}$  correspondant au composite unidirectionnel est moyennée sur toutes les orientations.

Une autre façon de procéder consiste à utiliser l'équation 2.46 :

$$\begin{aligned}
C_{ijkl} = & C_1 a_{ijkl} + C_2 (a_{ij} \delta_{kl} + a_{kl} \delta_{ij}) + C_3 (a_{ik} \delta_{jl} + a_{il} \delta_{jk} + a_{jl} \delta_{ik} + a_{jk} \delta_{il}) \\
& + C_4 \delta_{ij} \delta_{kl} + C_5 (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk})
\end{aligned} \quad (2.46)$$

sachant que les cinq constantes  $C_i$  sont données par l'équation 2.71 et que le tenseur d'ordre 4 peut être calculé par :

$$a_{ijkl} = \iint_{\Omega} p_i p_j p_k p_l \psi(\theta', \phi') d\Omega \quad (2.113)$$

Bien sûr, les coefficients de dilatation sont calculés par l'équation de Levin, en utilisant directement les résultats du problème élastique (Eq.2.45 ou 2.46).

La seule difficulté consiste finalement à trouver la fonction décrivant la distribution d'orientation dans le cas de composites injectés. Kacir [Kacir et al., 1975] a proposé une fonction exponentielle à un paramètre, qui a la particularité de pouvoir décrire les distributions d'orientation dans un plan, allant de l'unidirectionnel à l'isotropie. Même si nos distributions ne sont pas strictement dans un plan ( $\theta'$  est proche, mais toujours exactement égal à  $90^\circ$ ), on ne va s'intéresser qu'à la distribution  $\psi_\phi$  de

l'angle  $\phi'$  et considérer que  $\theta'$  est constant et égal à  $90^\circ$ , afin de pouvoir utiliser la fonction de Kacir dans un polymère plus simple en 2 dimensions.

### Fonction de Kacir

La fonction de Kacir a déjà été citée dans la partie 1 et on rappelle qu'elle est définie par:

$$f_{Kacir}(\phi') = \lambda e^{-\lambda\phi'} \quad (1.14)$$

où le paramètre  $\lambda$  tend vers 0 pour une distribution aléatoire des fibres et  $\lambda$  tend vers  $+\infty$  pour une orientation parfaitement unidirectionnelle. Dans sa définition, la fonction  $f_{Kacir}$  est définie entre  $0^\circ$  et  $90^\circ$ ; pour étendre son domaine de définition à  $[-90^\circ; 90^\circ]$ , il suffit de considérer la valeur absolue de l'angle  $\phi'$  dans l'équation 1.15. La fonction de distribution associée est alors :

$$\psi_{Kacir}(\phi') = \frac{\lambda e^{-\lambda|\phi'|}}{2(1 - e^{-\lambda\pi/2})} \quad (1.16)$$

avec  $\lambda \in ]0, +\infty[$ . On peut vérifier facilement que  $\int_{-\pi/2}^{\pi/2} \psi_{Kacir}(\phi') d\phi' = 1$ .

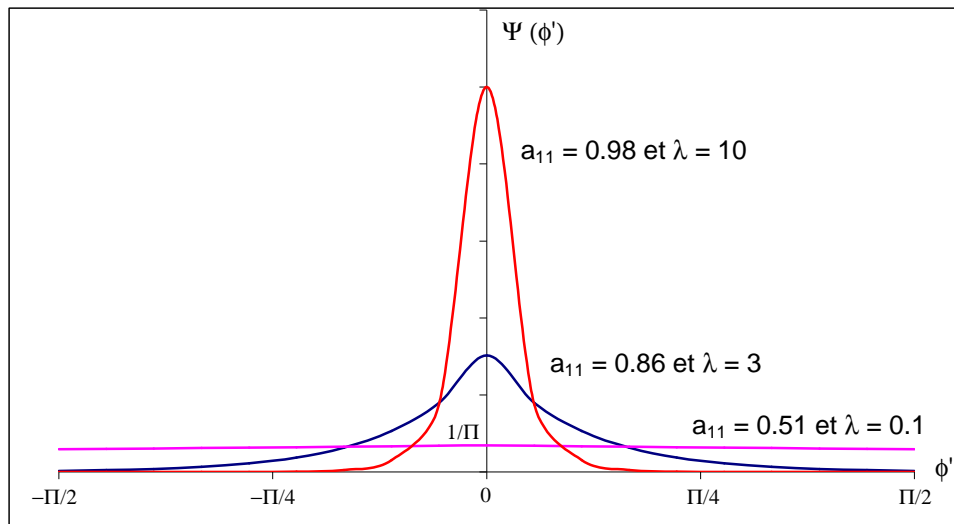
Notons que la fonction de distribution d'orientation associée à la fonction de Kacir est indépendante du facteur pré-exponentiel  $\lambda$  de celle-ci. En d'autres termes, toute fonction  $f$  proportionnelle à la fonction de Kacir donne la même distribution d'orientation  $\psi$  et le facteur pré-exponentiel n'est pas un paramètre supplémentaire permettant de décrire la distribution d'orientation.

Le paramètre  $\lambda$  est facilement obtenu numériquement à partir d'une des composantes  $a_{11}$  ou  $a_{22}$  du tenseur d'ordre 2, dont les expressions de l'équation 2.112 se simplifient puisque  $\theta' = 90^\circ$  :

$$\begin{cases} a_{11} = \int_{\phi'} \psi_{Kacir}(\phi') \cos^2(\phi') d\phi' \\ a_{22} = \int_{\phi'} \psi_{Kacir}(\phi') \sin^2(\phi') d\phi' \\ a_{12} = a_{13} = a_{23} = a_{33} = 0 \end{cases} \quad (2.114)$$

Ainsi il y a bijection entre  $\lambda$  et  $a_{11}$  ou  $a_{22}$ .  $\psi(\phi')$  étant symétrique,  $a_{12}$  se retrouve égal à 0. Expérimentalement, le repère d'injection est presque toujours confondu avec le repère principal d'orientation, si bien que  $a_{12}$  est proche de 0.

La figure 2.39 montre les différents cas de fonctions de distribution obtenues pour des valeurs de  $a_{11}$  caractéristiques.



**Figure 2.39** : fonctions de distribution d'orientation de Kacir obtenues pour différentes valeurs de  $a_{11}$

Le calcul des propriétés élastiques du composite se simplifie aussi par rapport au cas d'une distribution d'orientation tridimensionnelle, puisque l'Eq.2.45 devient :

$$\mathbf{C} = \int_{\phi'} \mathbf{C}^{UD}(\phi') \psi_{Kacir}(\phi') d\phi' \quad (2.115)$$

ou si on utilise l'Eq.2.46, le calcul du tenseur d'ordre 4 (Eq.2.113) devient :

$$a_{ijkl} = \int_{\phi'} p_i p_j p_k p_l \psi_{Kacir}(\phi') d\phi' \quad (2.116)$$

Chen et Cheng [1996] ont utilisé avec succès la fonction de Kacir pour décrire l'orientation des fibres dans le plan et en déduire les 9 composantes indépendantes du tenseur de rigidité, dans le cas de barres injectées en polysulfure de phénylène (PPS) renforcées de 30% et 40% en poids de fibres de carbone ou de 40% en poids de fibres de verre. L'écart entre les prédictions et les résultats expérimentaux de Choy et al. [1992] est inférieur à 10% en moyenne pour toutes les composantes : ces résultats satisfaisants nous encourageant à utiliser la fonction de Kacir dans le cas de nos composites à matrice polyarylamide et l'application est réalisée dans le paragraphe qui suit.

### b) Application au grade 1002 injecté

La première étape consiste à trouver la valeur du paramètre d'orientation  $\lambda$ . Pour cela, on a besoin de la composante  $a_{11}$  du tenseur  $[a_2]$ . Comme la fonction de Kacir traite d'un problème dans le plan, il est



indispensable de disposer d'un tenseur d'orientation bidimensionnel, contrairement à nos mesures d'orientation effectuées dans la partie 1 de cette étude. Ce dernier est obtenu expérimentalement en supposant que  $\theta'$  est constant et égal à  $90^\circ$ , et en ne considérant que la distribution de l'angle  $\phi'$ . C'est ainsi que l'on obtient, à partir des données expérimentales :

$$a_{11} = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \cos^2(\phi^k) \quad (2.117)$$

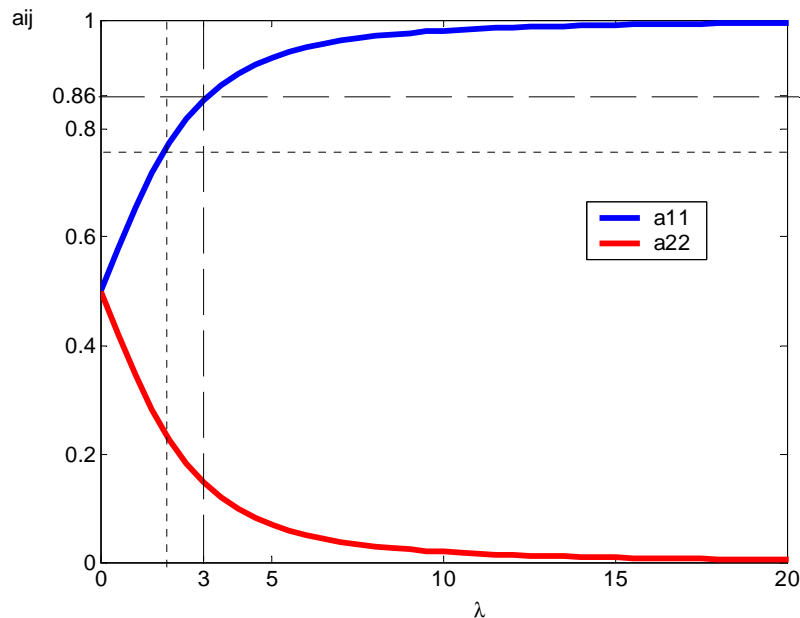
où  $N$  est le nombre total de fibres.

### Grade 1002 – plaque de 1 mm

Pour les plaques de 1 mm, on trouve une valeur expérimentale de  $a_{11}$  égale à 0.86 (Eq.1.117).

A partir de l'Eq.2.114, on peut tracer l'évolution des composante de  $[a_2]$  en fonction de  $\lambda$  (Figure 2.40) : les composantes  $a_{11}$  et  $a_{22}$  sont complémentaires et la composante  $a_{12}$  théoriquement égale à 0 n'est pas représentée. On en déduit que pour  $a_{11} = 0.86$ ,  $\lambda$  doit être égal à 3.

On peut vérifier si cette valeur du paramètre d'orientation  $\lambda$  permet une bonne description de la distribution expérimentale de l'angle  $\phi'$ . Dans ce but, la figure 2.41 compare les probabilités expérimentales déduites de la fonction de Kacir.



**Figure 2.40** : évolution des composantes du tenseur d'orientation d'ordre 2  $[a_2]$  en fonction du paramètre d'orientation  $\lambda$  de la fonction de Kacir

Il faut noter que la probabilité  $P_{Kacir}$  sur un intervalle  $d\phi'$  est déduite de la fonction de distribution  $\psi_{Kacir}$  d'après la relation :

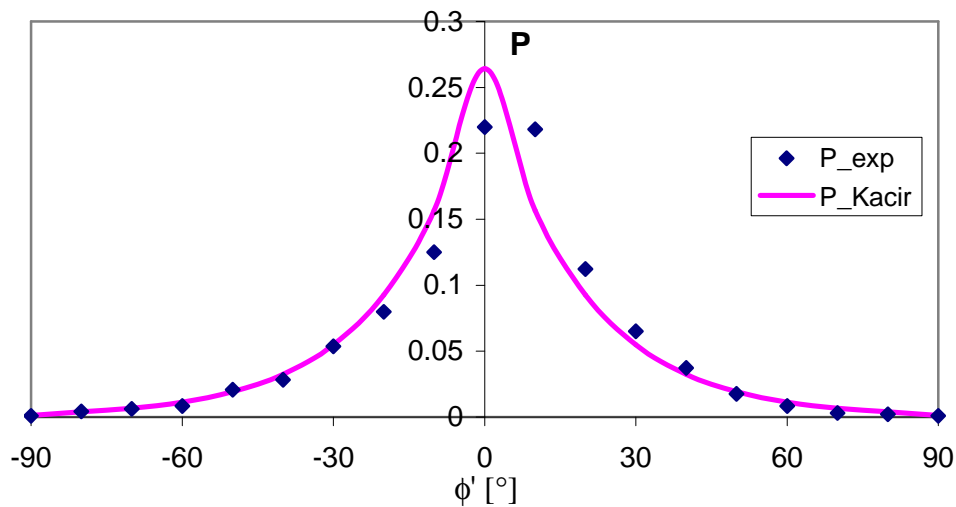
$$P_{Kacir}(\phi') = \psi_{Kacir}(\phi') d\phi' \quad (2.118)$$

Les données expérimentales sont cumulées sur des intervalles d'étendue  $10^\circ$ , aussi pour être comparables, les probabilités obtenues pour la fonction de distribution de Kacir sur un intervalle  $[\phi' - \phi_1, \phi' + \phi_1]$  sont calculées comme suit :

$$P_{Kacir}^{\phi_1}(\phi') = \int_{\phi' - \phi_1}^{\phi' + \phi_1} \psi_{Kacir}(\phi) d\phi \quad (2.119)$$

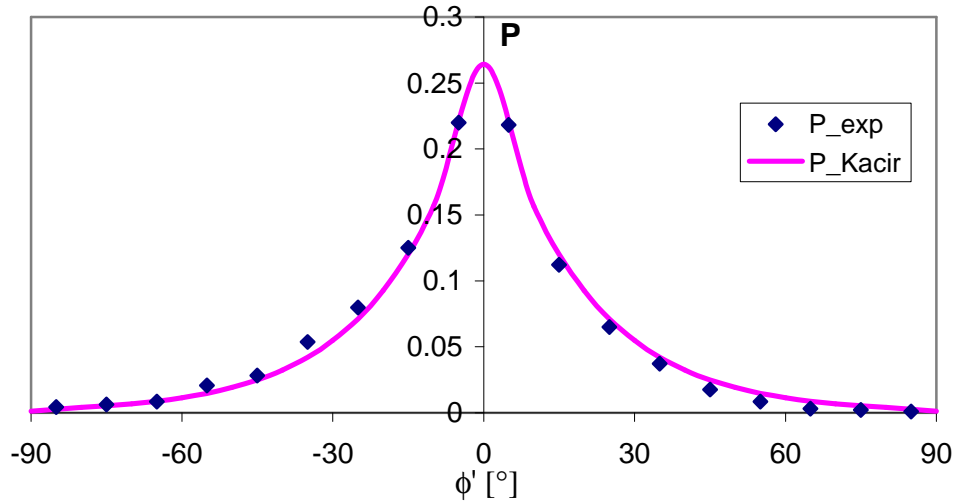
avec  $\phi_1 = 5^\circ$  dans notre cas.

On constate que nos mesures expérimentales ne sont pas exactement centrées sur la valeur 0, car le repère d'injection ne correspond pas exactement au repère principal du composite (d'ailleurs, la valeur de  $a_{12}$  mesurée est non nul).



**Figure 2.41** : description de la distribution expérimentale de l'angle  $\phi'$  par la fonction de Kacir pour  $\lambda = 3$ . Grade 1002, plaque de 1 mm

Si on décale manuellement nos mesures de  $-5^\circ$ , ce qui nous placerait dans le repère principal d'orientation avec une valeur de  $a_{12} = 0$ , on constate que la description avec la fonction de distribution de Kacir est en très bon accord avec l'expérience (Figure 2.42).



**Figure 2.42** : distribution expérimentale de l'angle  $\phi'$  décalée horizontalement de  $-5^\circ$  et description par la fonction de Kacir pour  $\lambda = 3$ . Grade 1002, plaque de 1 mm

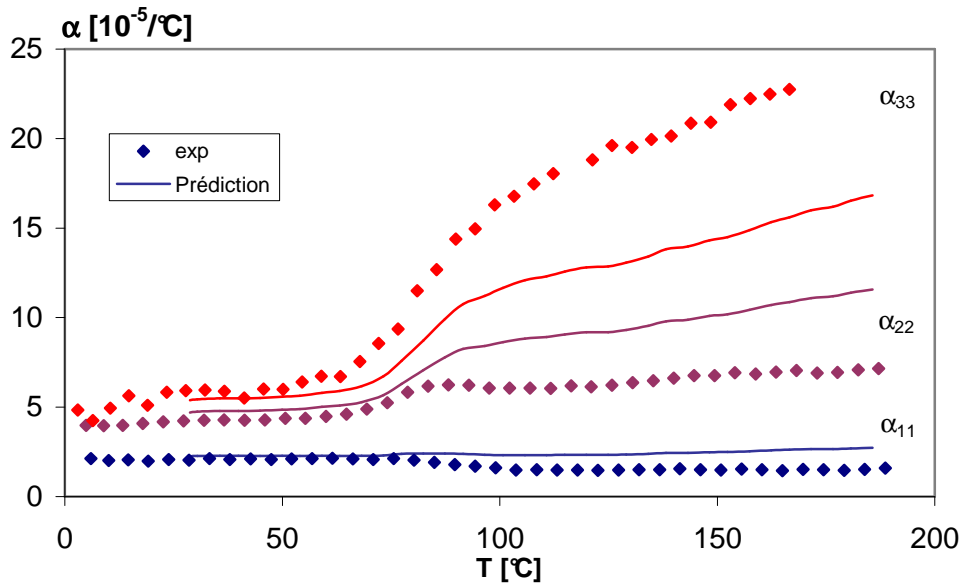
Les prédictions thermo-mécaniques qui en découlent sont évaluées en étant comparées aux mesures expérimentales. Le tableau 2.14 compare les modules longitudinal et transversal prédits (Eq.2.115) aux mesures par essais de traction : à température ambiante, la composante  $E_1$  est surestimée de 4.5% et  $E_2$  de 4.1% ; à  $120^\circ\text{C}$ , les écarts sont respectivement de 2.7% et 1.6%. On constate donc que les composantes sont bien estimées (logiquement surestimées, puisque toutes les fibres sont supposées être dans le plan) et en moyenne, l'écart est de 3.2% par rapport à l'expérience : il est réduit de moitié par rapport aux prédictions déduites de la méthode directe de Mori-Tanaka, où on rappelle que l'écart moyen sur les 4 composantes est de 6.3%.

		expérience	$\lambda = 3$	Méthode directe Mori-Tanaka	Moyenne des rigidités avec $[a_{ijkl}]_{\text{exp}}$
$T_{\text{amb}}$	$E_1$	11.80	12.33	12.52	12.18
	$E_2$	7.22	7.52	7.49	7.76
$120^\circ\text{C}$	$E_1$	3.74	3.84	4.32	4.18
	$E_2$	1.26	1.28	1.26	1.45

**Tableau 2.14** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions en utilisant la fonction de Kacir avec  $\lambda = 3$  et la méthode directe de Mori-Tanaka. Grade 1002, plaque de 1 mm d'épaisseur

Les coefficients de dilatation déduits des propriétés élastiques sont superposés aux mesures expérimentales sur la figure 2.43. Comparés aux résultats obtenus en utilisant les différentes équations de fermeture (Figure 2.25), la composante  $\alpha_{11}$  a des valeurs positives sur toute la gamme de températures ; les écarts à haute température sont du même ordre de grandeur qu'avec la méthode

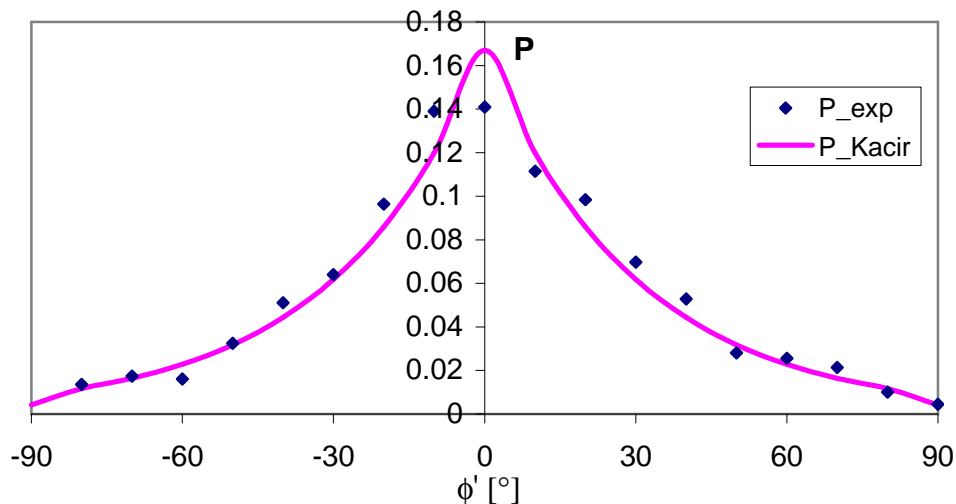
directe et un peu plus grands qu'en utilisant la procédure en 2 étapes qui moyenne les rigidités et utilise le tenseur d'orientation  $a_{ijkl}$  expérimental.



**Figure 2.43 :** grade 1002, plaque de 1 mm d'épaisseur : coefficients de dilatation  $\alpha_{11}$ ,  $\alpha_{22}$ ,  $\alpha_{33}$ . Mesures expérimentales (symboles) et prédictions en utilisant la fonction de Kacir avec  $\lambda = 3$ .

### Grade 1002 – plaque de 3 mm

La composante  $a_{11}$  du tenseur d'ordre 2 vaut expérimentalement 0.76, lorsque seule l'angle  $\phi'$  est considéré. Il en résulte une valeur de  $\lambda$  égale à 1.9 (pointillés très fins sur la Figure 2.40). Cette valeur du paramètre d'orientation permet de décrire correctement la probabilité d'orientation  $P$  mesurée expérimentalement, comme le montre la figure 2.44.



**Figure 2.44 :** description de la distribution expérimentale de l'angle  $\phi'$  par la fonction de Kacir pour  $\lambda = 1.9$ . Grade 1002, plaque de 3 mm

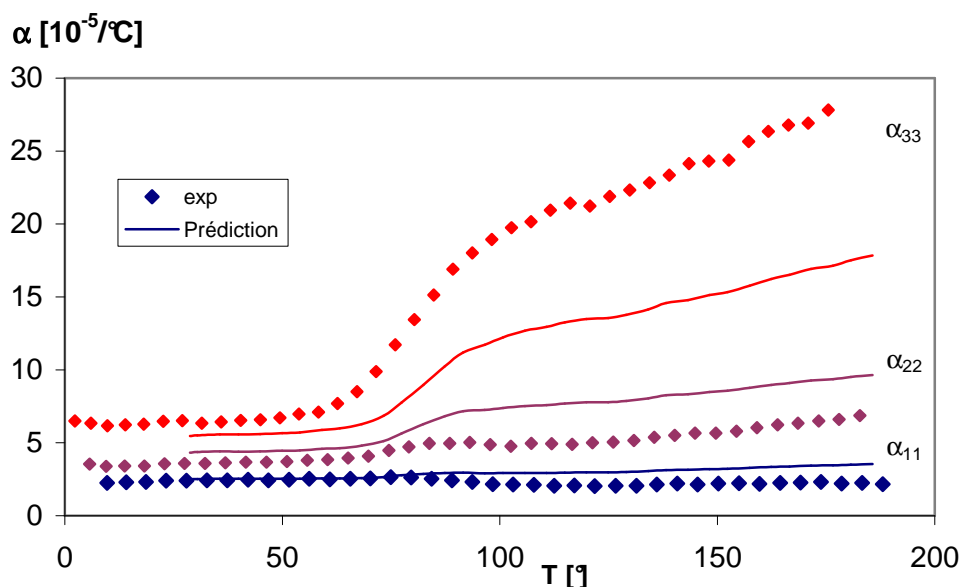
Ici encore on constate que la distribution n'est pas exactement symétrique et qu'un décalage de quelques degrés serait nécessaire pour rendre  $a_{12}$  nul.

Quand on s'intéresse aux propriétés élastiques et plus particulièrement aux modules d'Young (Tableau 2.15), on constate que  $E_1$  est surestimé, alors que  $E_2$  est sous-estimé (à température ambiante et à 120°C). En moyenne, l'écart avec l'expérience est de 13% : cet écart est plus faible qu'avec la méthode directe de Mori-Tanaka, où il atteint 15% ; en revanche, on est moins précis qu'avec l'utilisation du tenseur expérimental  $[a_4]_{\text{exp}}$  (écart moyen de 5%).

		expérience	$\lambda = 1.9$	Méthode directe Mori-Tanaka	Moyenne des rigidités avec $[a_{ijkl}]_{\text{exp}}$
$T_{\text{amb}}$	$E_1$	10.91	11.37	11.41	10.74
	$E_2$	8.86	7.90	7.87	8.56
120 °C	$E_1$	3.25	3.36	3.67	3.34
	$E_2$	2.27	1.51	1.53	1.99

**Tableau 2.15** : modules d'Young longitudinal ( $E_1$ ) et transversal ( $E_2$ ), en GPa. Mesures expérimentales et prédictions en utilisant la fonction de Kacir avec  $\lambda = 1.9$  et la méthode directe de Mori-Tanaka. Grade 1002, plaque de 3 mm d'épaisseur

Les coefficients de dilatation prédits sont montrés sur la figure 2.45, où ils sont comparés aux coefficients expérimentaux.



**Figure 2.45** : grade 1002, plaque de 3 mm d'épaisseur : coefficients de dilatation  $\alpha_{11}$ ,  $\alpha_{22}$ ,  $\alpha_{33}$ . Mesures expérimentales (symboles) et prédictions en utilisant la fonction de Kacir avec  $\lambda = 1.9$ .

Ici encore, les prédictions sont bien plus réalistes que toutes celles obtenues avec les différentes équations de fermeture (Figure 2.28) ; par contre, on est bien moins précis qu'avec la valeur expérimentale du tenseur d'ordre 4.

La méthode directe de Mori-Tanaka et la procédure en 2 étapes qui moyenne les rigidités en utilisant le tenseur d'ordre 4 expérimental minimisent largement  $\alpha_{33}$  aux hautes températures (plus de 30%). En représentant la distribution expérimentale des fibres par une distribution exclusivement dans le plan d'injection, les modèles micromécaniques devraient surestimer  $\alpha_{33}$  ; or ce n'est pas le cas, puisqu'on obtient des prédictions de  $\alpha_{33}$  proches des autres estimations. On peut avancer deux hypothèses pour expliquer cela :

- soit la matrice n'est pas isotrope même quand elle est chargée de fibres et  $\alpha_{33}$  est deux fois plus grand que  $\alpha_{11}$  ou  $\alpha_{22}$  ;
- soit les modèles basés sur l'approche de Mori-Tanaka ne sont pas aptes à prédire les coefficients de dilatation dans la direction perpendiculaire au plan des fibres, lorsque le contraste de module entre les phases est grand.

La vérification de la première hypothèse demanderait une analyse fine de l'orientation cristalline engendrée par les fibres et les plaquettes de talc, le faible pourcentage de talc ne pouvant expliquer à lui seul une telle anisotropie. La réalisation de figures de pôle en diffraction des rayons X sur des plaques injectées de matrice pure et de composite permettrait certainement de lever le doute. L'utilisation d'une matrice amorphe n'apporterait pas forcément une réponse plus claire, car le contraste entre les phases ne sera pas important, la matrice devant rester à une température inférieure à  $T_g$ .

Néanmoins, pour prendre en compte les propriétés isotropes transverses de la matrice dans nos modèles, la difficulté repose sur le calcul du tenseur d'Eshelby. En effet, dans le cas d'un milieu isotrope, quel que soit le type d'hétérogénéité (anisotrope ou non), le calcul du tenseur d'Eshelby est immédiat : des expressions analytiques existent (Annexe 1), qui dépendent du coefficient de Poisson de la matrice, et de la forme et de l'éclatement de l'hétérogénéité ; la seule restriction dans le cas de renforts isotropes transverses est que l'axe d'isotropie transverse doit être confondu avec l'axe de révolution du renfort [Mura, 1991]. En revanche, dans le cas de milieux anisotropes, le tenseur d'Eshelby doit être calculé à partir des fonctions de Green, qui n'ont plus d'expressions explicites : des intégrales dans l'espace de Fourier et dans l'espace physique doivent être calculées, ce qui complique les calculs.

Dans le cas d'un milieu isotrope transverse par exemple, le tenseur d'Eshelby  $E$  s'exprime de la façon suivante :

$$E_{ijkl} = \frac{1}{8\pi} C_{pqmn} (\bar{G}_{ipjq} + \bar{G}_{jpiq}) \quad (2.33)$$

où  $C$  est la matrice de rigidité du milieu (cela implique donc de connaître les propriétés élastiques de la matrice dans les 3 directions de référence) et  $\bar{G}$  sont les intégrales des fonctions de Green. Le tenseur  $\bar{G}$  a été calculé pour quelques cas [Lin et Mura, 1973] et l'annexe 1 montre les résultats pour un milieu isotrope transverse autour de l'axe 3.

On retiendra la complexité du calcul par rapport au cas isotrope ; c'est la raison pour laquelle nous avons opté pour l'hypothèse simplificatrice d'une matrice isotrope et les résultats qui en découlent étant en accord avec l'expérience, nous n'avons pas poussé l'analyse au cas d'un milieu isotrope transverse. D'ailleurs, nous ne disposons pas des données élastiques de la matrice dans la direction 3, car les plaques étant très minces (1 à 3 mm), il n'était pas possible de tester les échantillons par traction dans la direction de l'épaisseur.

### c) Synthèse

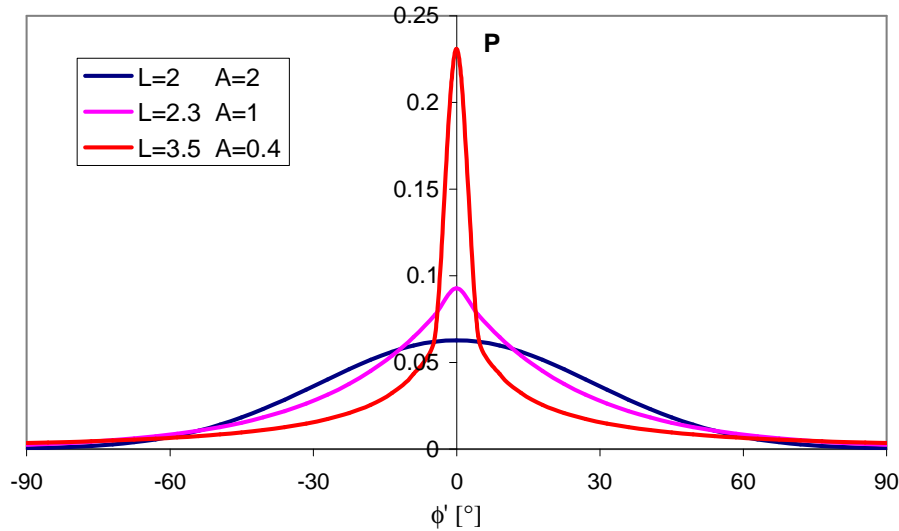
L'utilisation de la fonction de distribution de Kacir pour décrire la distribution d'orientation est très prometteuse, car elle permet de prédire les propriétés thermo-mécaniques des composites injectés avec autant de précision que la méthode directe de Mori-Tanaka, sans nécessiter pour autant la fonction d'orientation expérimentale. Elle évite aussi d'utiliser les approximations de fermeture pour évaluer le tenseur d'orientation d'ordre 4 et aboutit à des prédictions qui sont nettement plus proches des mesures expérimentales que l'utilisation de n'importe laquelle des 4 équations de fermeture considérées dans cette étude. En revanche, par rapport aux prédictions obtenues avec le tenseur réel (ou expérimental) d'ordre 4, les résultats obtenus avec la fonction de distribution de Kacir sont encore médiocres, surtout pour les coefficients de dilatation, ce qui signifie que cette fonction n'est pas forcément la plus adaptée et que des améliorations peuvent encore être apportées.

Il est utile de préciser qu'une première limite de la fonction de distribution de Kacir est qu'elle ne possède qu'un seul paramètre. Ceci est restrictif, car pour une valeur de  $a_{11}$  donnée, une seule forme de la distribution d'orientation est possible, alors qu'en réalité, plusieurs distributions de formes différentes peuvent conduire à la même valeur de  $a_{11}$ . Pour être plus général, il serait préférable d'introduire un 2<sup>ème</sup> paramètre qui jouerait notamment sur la largeur de la distribution autour de la direction d'injection : nous pensons qu'il serait bénéfique de généraliser la fonction de Kacir, par exemple sous la forme :

$$f(\phi) = \exp(-L\phi^A) \quad (2.120)$$

où  $L$  (assimilable à  $\lambda$ ) et  $A$  sont deux paramètres à déterminer. La figure 2.46 montre 3 exemples de forme de distribution pour 3 couples ( $L ; A$ ) conduisant à une valeur constante de  $a_{11}$  égale à 0.79 ; la courbe rose ayant pour paramètres ( $L = 2.3 ; A = 1$ ) correspond à la fonction de Kacir avec  $\lambda = 2.3$ . On voit que les formes sont littéralement différentes et par conséquent l'utilisation d'une telle fonction

pourrait permettre une description plus fine et plus générale des distributions d'orientation. Notons que pour les distributions dans les composites injectés chargés de fibres courtes,  $A$  semble rester proche de 1 ; la fonction simple de Kacir semble convenir.



**Figure 2.46** : différentes distributions d'orientation conduisant à la même valeur  $a_{11} = 0.79$  du tenseur d'orientation d'ordre 2

Le fait d'introduire un 2<sup>ème</sup> paramètre permet de faire varier le tenseur d'orientation d'ordre 4 pour un tenseur d'ordre 2 donné. En effet, dans le cas d'une distribution dans un plan, un nombre limité de composantes de ce tenseur est non nul : toutes les composantes contenant l'indice 3 sont nulles et pour des distributions symétriques par rapport à la direction 1 (c'est le cas typiquement avec la fonction de Kacir), les composantes  $a_{1112}$  et  $a_{1222}$  sont nulles (comme l'est  $a_{12}$  dans le tenseur d'ordre 2). Au final, 3 composantes seulement sont non nulles :  $a_{1111}$ ,  $a_{2222}$  et  $a_{1122}$  et une relation existe, par définition, entre ces 3 coefficients :

$$a_{1111} + 2a_{1122} + a_{2222} = 1 \quad (2.121)$$

Si la fonction décrivant la distribution d'orientation ne possède qu'un seul paramètre, elle ne pourra contrôler qu'une composante du tenseur d'ordre 4. On comprend donc que la forme de la distribution dépend non seulement du tenseur d'orientation d'ordre 2, mais du tenseur d'ordre 4 aussi, et que pour pouvoir décrire en toute rigueur une distribution d'orientation, deux paramètres sont nécessaires. La fonction citée plus haut est une éventuelle possibilité, mais on peut envisager d'autres solutions, comme la fonction à deux paramètres proposée par Fu et Lauke [1996, 1997, 1998] et qui est de la forme :  $f(\phi') = (\sin \phi')^{2p-1} (\cos \phi')^{2q-1}$ .

Un deuxième défaut de la fonction de Kacir est qu'elle n'est applicable que pour des distributions dans un plan et néglige l'influence de l'orientation hors de ce plan. Par conséquent, la composante  $a_{11}$



utilisée pour déterminer le paramètre d'orientation  $\lambda$  est surestimée : c'est ainsi que pour le grade 1002 et la plaque de 1 mm,  $a_{11} = 0.86$  au lieu de la valeur réelle mesurée de 0.79 ; pour la plaque de 3 mm,  $a_{11} = 0.76$  au lieu de 0.64. Les prédictions thermo-mécaniques qui en découlent sont alors faussées, ce qui explique notamment pourquoi le module  $E_1$  est surestimé.

Afin de pouvoir considérer des distributions d'orientation tridimensionnelles et pour équilibrer la valeur de  $a_{11}$  et la rendre plus réaliste, il est nécessaire de prendre en compte les valeurs de l'angle  $\theta'$ . Dans ces conditions, la fonction de Kacir telle qu'elle est définie n'est plus applicable et il faut trouver une nouvelle fonction  $f(\theta', \phi')$  qui dépend des deux angles  $\phi'$  et  $\theta'$ . Une façon simple d'envisager le problème serait par exemple de considérer le produit de 2 fonctions de Kacir, chacune dépendant d'un des angles, de sorte que :

$$\begin{aligned} f(\theta', \phi') &= f_1(\theta') \times f_2(\phi') \\ &= \exp\left[-\lambda_1\left(\frac{\pi}{2} - \theta'\right)\right] \exp(-\lambda_2\phi') \end{aligned} \quad (2.122)$$

De cette manière, les composantes réelles du tenseur d'orientation d'ordre 2 pourraient être utilisées, et des prédictions plus conformes pourraient être obtenues. La paramètre  $\lambda_1$  peut être identifié à partir de la mesure de  $a_{33}$ , qui est indépendant de  $\lambda_2$ . Malheureusement nous n'avons pas pu tester une telle fonction par manque de temps.

On voit donc que la fonction de Kacir est une fonction simple, qui constitue une approximation de fermeture, puisqu'elle permet sa propre évaluation du tenseur d'ordre 4. Basée sur une modélisation assez réaliste de la distribution expérimentale, elle permet d'améliorer les prédictions des propriétés thermo-mécaniques des composites. Cependant il existe deux défauts majeurs sur lesquels des améliorations peuvent être apportées et nous avons d'ailleurs proposé quelques solutions, qui sont des fonctions de Kacir modifiées ou généralisées à 2 paramètres, mais nous n'avons pas pu les tester par manque de temps.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

### PARTIE 2

Aboudi J., *Effective thermoelastic constants of short-fiber composites*, *Fibre science and technology*, 20, 1984, 211-225.

Advani S.G. and Tucker III C.L., *The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites*, *J. Rheol.*, 31 (8), 1987, 751-784.

Advani S.G., Tucker III C.L., *Closure approximations for three-dimensional structural tensors*, *J Rheol*, 34, 3, 1990, 367-386.

Ashton J.E., Halpin J.C. and Petit P.H., *Primer on Composite Analysis*, Technomic Publishing Co., Stamford, Conn., 1969, Chapter 5.

Azaiez J., *Stability of the mixing layer of fiber suspensions: role of the closure approximation and off-plane orientation*, *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 95, 2000, 253-276.

Bedoui F., *Etude du comportement élastique et viscoélastique linéaire des polymères semi-cristallins par approche micromécanique*. Thèse de l'ENSAM de Paris, Novembre 2005.

Benveniste Y., *A new approach to the application of Mori-Tanaka's theory in composite materials*, *Mechanics of Materials*, 6, 1987, 147-157.

Benveniste Y., Dvorak G.J., Chen T., *Stress fields in composites with coated inclusions*, *Mechanics of Materials*, 7, 1989, 305-317.

Benveniste Y., Dvorak G.J., *On a correspondence between mechanical and thermal effects in two-phase composites*, In: Weng G.J., Taya M., Abe H. (Eds.), *The Toshio Mura Anniversary Volume: micromechanics and inhomogeneity*. Springer, New-York, 1990, 65-81.

Benveniste Y., Dvorak G.J., Chen T., *On diagonal and elastic symmetry of the approximate effective stiffness tensor of heterogeneous media*, *J. Mech. Phys. Solids*, 39 (7), 1991, 927-946.

Biolzi L., Castellani L., Pitacco I., *On the mechanical response of short fibre reinforced polymer composites*, Chapman & Hall, 1994, 2507-2512.

Bourgeois N., *Caractérisation et modélisation micromécanique du comportement et de l'endommagement d'un composite à matrice métallique: Al/SiCp*. Thèse de l'Ecole Centrale de Paris, Juin 1994.

Bowles D.E. , Tompkins S.S., *Prediction of coefficients of thermal expansion for unidirectional composites*, *J. Composite Materials*, 23, 1989, 370-388.

Brinson L.C., Lin W.S., *Comparison of micromechanics methods for effective properties of multiphase viscoelastic composites*, *Composite Structures* 41, 1998, 353-367.

Brown L.M., Clarke D.R., *Work hardening due to internal stresses in composite materials*, *Acta Metall*, 23, 1975, 821-30.

Brucato V., Piccarolo S., La Carrubba V., *Chem. Eng Sci.*, 57 (19), 2002, 4129.

- Budiansky B., *On the elastic moduli of some heterogeneous materials*, J. Mech. Phys. Solids 13, 1965, 223-227.
- Castelnau O., *Homogénéisation des milieux thermo-élastiques et (thermo)-visco-élastiques linéaires*, Pendant l'Ecole thématique du CNRS sur « l'homogénéisation en mécanique et physique des matériaux », La Londe les Maures, Août 2003.
- Chamis C.C., *Simplified composite micromechanics equations for hygral, thermal and mechanical properties*, SAMPE Quarterly, 15(3), April 1984, 14-23.
- Chen C.-H., Cheng C.-H., *Effective elastic moduli of misoriented short-fiber composites*, Int. J. Solids Structures, 33 (17), 1996, 2519-2539.
- Chen T., Dvorak G.J. and Benveniste Y., *Mori-Tanaka estimates of the overall elastic moduli of certain composite materials*, J. Appl. Mech., 59, 1992, 539-546.
- Chou T-W, Nomura S, Taya M., *A self-consistent approach to the elastic stiffness of short-fiber composites*. In: Vinson JR, editor. Modern developments in Composite Materials and Structures. New-York: ASME, 1979, 149-164.
- Chou T-W, Nomura S, Taya M., *A self-consistent approach to the elastic stiffness of short-fiber composites*, J. Compos Mater, 14, 1980, 178-188.
- Chow T.S., *Elastic moduli of filled polymers: the effect of particle shape*, J. Appl. Phys, 48, 1977, 4072-4075.
- Choy C.L., Leung W.P., Kowk K.W., Lau Felix P., *Elastic moduli and thermal conductivity of injection-molded short-fiber-reinforced thermoplastics*, Polymer Compos., 13, 1992, 69-80.
- Christensen R.M., Waals F.M., *Effective stiffness of randomly oriented fiber composites*, J. Composite Materials, 6, 1972, 518-532.
- Chung D.H., Kwon T.H., *Improved model of orthotropic closure approximation for flow induced fiber orientation*, Polym. Compos. 22, 5, 2001, 636-649.
- Cintra J.S., Tucker C.L., *Orthotropic closure approximations for flow-induced fiber orientation*, J. Rheol. 39, 1995, 1095-1022.
- Clyne T.W., *A simple development of the shear lag theory appropriate for composites with a relatively small modulus mismatch*, Matls Sci Eng A, 122, 1989, 183-192.
- Cook R.D, Malkus D.S., Plesha M.E., *Concepts and applications of finite element analysis*, John Wiley and Sons, Third Edition, 1989.
- Cox H.L., *The elasticity and strength of paper and other fibrous materials*, Brit J Appl Phys, 3, 1952, 72-79.
- Das Gupta, *On effective thermal expansion coefficients of composites with anisotropic phases*, Int. J. Solids Structures, Vol.10, 1974, 1221-1227.
- Deterre R., *Analyse du compactage lors de l'injection des thermoplastiques*. Thèse de l'université Louis Pasteur, Strasbourg, 1984.

Dunn M.L., Ledbetter H., Heyliger P.L., Choi C.S., *Elastic constants of textured short-fiber composites*, J. Mech. Phys. Solids, Vol.44, No.9, 1996, 1509-1541.

Dunn M.L., Ledbetter H., *Micromechanically-based acoustic characterization of the fiber orientation distribution function of morphologically textured short-fiber composites: prediction of thermomechanical and physical properties*, Materials Science and Engineering, A285, 2000, 56-61.

Duschlbauer D., Pettermann H.E., Böhm H.J., *Mori-Tanaka based evaluation of inclusion stresses in composites with nonaligned reinforcements*, Scripta Materiala, 48, 2003, 223-228.

Eshelby JD, *The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion and related problems*, Proc Roy Soc A, 241, 1957,376-96.

Eshelby JD., *Elastic inclusions and inhomogeneities*, In: Sneddon IN, Hill R, editors. Progress in Solid Mechanics, vol.2. Amsterdam 1961, 89-140.

Ferrari M., *Asymmetry and the high concentration limit of the Mori-Tanaka effective medium theory*, Mechanics of Materials, 11, 1991, 251-256.

Fisher F.T, Brinson L.C., *Viscoelastic interphases in polymer-matrix composites: theoretical models and finite-element analysis*, Composite Science and Technology 61, 2001, 731-748.

Fu S.Y., Lauke B., *Effects of fibre length and orientation distributions on the tensile strength of short-fibre-reinforced polymers*, Compos. Sci. Technol., 56, 1996, 1179-1190.

Fu S.Y., Lauke B., *The fibre pull-out energy of misaligned short fibre composites*, J. Mater. Sci., 32, 1997, 1985-1993.

Fu S.Y., Lauke B., *The elastic modulus of misaligned short fibre reinforced polymers*, Compos. Sci. Technol., 58, 1998, 389-400.

Fu S.Y., Lauke B., *An analytical characterization of the anisotropy of the elastic modulus of misaligned short-fiber-reinforced polymers*, Composites Science and Technology 58, 1998, 1961-1972.

Gibiansky L.V., Torquato S., *Thermal expansion of isotropic multiphase composites and polycrystals*, J. Mech. Phys. Solids, Vol.45 (7), 1997, 1223-1252.

Gilormini P., Bréchet Y., *Syntheses : Mechanical properties of heterogeneous media : which material for which model ? which model for which material?*, Modelling Simul. Mater. Sci. Eng., 7, 1999, 805-816.

Gupta M., Wang K.K., *Fibre orientation and mechanical properties of short-fibre-reinforced injection-molded composites: simulation and experimental results*, Polymer Composites, 14(5), 1993, 367-382.

Gusev A. et al., *Orientation averaging for stiffness and thermal expansion of short fiber composites*, Advanced Engineering Materials, 4 (12), 2002.

Halpin J.C., *Stiffness and expansion estimates for oriented short fiber composites*, J. composite materials, Vol.3, October 1969, 732-734.

Halpin J.C., Kardos J.L., *The Halpin-Tsai equations: a review*, Polymer Engineering and Science, May 1976, Vol.16, N°5, 344-352.

- Halpin J.C., Pagano N.J., *The laminate approximation for randomly oriented fibrous composites*, J. Comp. Mat., 3, 1969, 720.
- Hashin Z., Shtrikman T., *A variational approach to the elastic behavior of multi-phase materials*, J. Mech. Phys. Solids 11, 1963, 127-140.
- Hershey A.V., *The elasticity of an isotropic aggregate of anisotropic cubic crystals*, J. Appl. Mechanics, Vol.21, 1954, 236-241.
- Hill R., *The elastic behavior of a crystalline aggregate*, Proc. Phys. Soc. London, Vol.A65, 1952, 349-354.
- Hill R., *Elastic properties of reinforced solids: some theoretical principles*, J. Mech Phys Solids, Vol.11, 1963, 357-72.
- Hill R., *Theory of mechanical properties of fibre-strengthened materials: 1. Elastic behaviour*, J. Mech. Phys. Solids, 12, 1964, 199-212.
- Hill R., *A self-consistent mechanics of composite materials*, J. Mech. Phys. Solids 13, 1965, 213-222.
- Huang J.H., *Some closed-form solutions for effective moduli of composites containing randomly oriented short fibers*, Materials Science and Engineering, A315, 2001, 11-20.
- Kamal M.R., Moy H.F., *Estimation and measurement of the distribution of tensile moduli in injection molded thermoplastics*, Chem. Eng. Commun., 12, 1981, 253-265.
- Krenchel H., *Fibre reinforcement*, Copenhagen: Akademisk Forlag, 1964.
- Kröner E., *Berechnung der elastischen konstanten des vielkristalls aus den konstanten des einkristalls*, Z. Phys., Vol.151, 1958, 504-518.
- Levesque M., *Modélisation du comportement mécanique de matériaux composites viscoélastiques non linéaires par une approche d'homogénéisation*. Thèse de l'ENSAM de Paris, Décembre 2004.
- Levin VM., *Thermal expansion coefficients of heterogeneous materials*, Mekhanika Tverdogo Tela, 2, 1967, 88-94. English translation in Mech Solids, 2, 1967, 58-61.
- Li J.Y., *On micromechanics approximation for the effective thermoelastic moduli of multi-phase composite materials*, Mechanics of Materials, 31, 1999, 149-159.
- Lielens G., Pirotte P., Couniot A., Dupret F., Keunigs R., *Prediction of thermo-mechanical properties of compression-moulded composites*, Composites Part A, 29, 1998, 63-70.
- Lin SC, Mura T., *Elastic fields of inclusions in anisotropic media (II)*, Phys Stat Sol (a), 15, 1973, 281-285.
- Luyé J.F., *Etude thermophysique du refroidissement du polypropylène injecté*. Thèse de l'ENSAM de Paris, Mars 1999.
- Maewal A., Dandekar D.P., *Effective Thermoelastic Properties of Short-Fiber Composites*, Acta Mechanica, 66, 1987, 191-204.

- McGee S.H., *The influence of microstructure on the elastic properties of composite materials*. Thèse de l'Université de Delaware, 1982.
- McLaughlin R., *A study of the differential scheme for composite materials*, Int. J. Engng Sci. 15, 1977, 237-244.
- Mitsubishi Gas Chemical, Nylon MXD6, 2003 (<http://www.mgc-a.com/Pages/MXD6/hist-mxd6.html>)
- Mlekusch B., *Thermoelastic properties of short-fibre-reinforced thermoplastics*, Composites Science and Technology, 59, 1999, 911-923.
- Mori T. and Tanaka K., *Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions*, Acta Metall. 21, 1973, 571-574.
- Munganga J.M.W., Reddy B.D., Diatezua K.J., *Aspects of the thermodynamic stability of fibre suspension flows*, J. Non-Newtonian Fluid Mech., 92, 2000, 135-150.
- Mura T., *Micromechanics of defects in solids*, Martinus Nijhoff Publishing, La Hague, Boston, Londres, 1991.
- Nemat-Nasser S., Hori M., *Micromechanics: overall properties of heterogeneous materials*, Elsevier, New-York, 1993.
- Norris A.N., *A differential scheme for the effective moduli of composites*, Mech. Mater. 4, 1985, 1-16.
- O'Regan D.F., Akay M., Meenan B., *A comparison of Young's modulus predictions in fibre-reinforced-polyamide injection mouldings*, Composites Science and Technology 59, 1999, 419-427.
- Peyroux R., *Caractéristiques thermoélastiques de matériaux composites à fibres courtes*. Thèse de l'Université Montpellier II, mai 1990.
- Peyroux R., *Modélisation du comportement élastique de matériaux composites à fibres courtes*, Revue des composites et des matériaux avancés, 2(1), 1992, 55-78.
- Pierard O., Friebel C., Doghri I., *Mean-field homogenization of multi-phase thermo-elastic composites: a general framework and its validation*, Composites Science and Technology, 64, 2004, 1587-1603.
- Qiu Y.P., Weng G.J., *On the application of Mori-Tanaka's theory involving transversely isotropic spheroidal inclusions*, Int. J. Engng. Sci., 28 (11), 1990, 1121-1137.
- Reuss A., *Berechnung des Fließgrenze von Mischkristallen auf Grund der Plastizitätsbedingung für Einkristalle*, Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik, Vol.9, 1929, 49-58.
- Robinson I.M., Robinson J.M., *The effect of fibre aspect ratio on the stiffness of discontinuous fibre-reinforced composites*, Composites, 25, 1994, 499-503.
- Rosen B.W., Hashin Z., *Effective thermal expansion coefficients and specific heats of composite materials*, Int. J. Engng. Sci., Vol.8, 1970, 157-173.
- Russel W.B., *On the effective moduli of composite materials: effect of fiber length and geometry at dilute concentrations*, J. Appl. Math. Phys. (ZAMP), 24, 1973, 581-600.

- Shapery R.A., *Thermal expansion coefficients of composite materials based on energy principles*, J. Composite Materials, Vol 2(3), 1968, 380-404.
- Schjødt-Thomsen J., Pyrz R., *The Mori-Tanaka stiffness tensor: diagonal symmetry, complex fibre orientations and non-dilute volume fractions*, Mechanics of Materials, 33, 2001, 531-544.
- Suquet P., *Local and global aspects in the mathematical theory of plasticity*, in "Plasticity Today", Ed. SAWCZUK A., BIANCHI G., Elsevier, 1985.
- Tait P.G., *Physical Chemistry*, 2, p1, 1888.
- Takao Y., Chou T.W., Taya M., *Effective longitudinal Young's modulus of misoriented short fiber composites*, J. of Applied Mech., Vol.49, N°3, 1982, 536-540.
- Takao Y., Taya M., *The effect of variable aspect ratio on the stiffness and thermal expansion coefficients of a short fiber composite*, J. Comp. Mat., 21(2), 1987, 140-156.
- Tandon G.P. and Weng G.J., *The effect of aspect ratio of inclusions on the elastic properties of unidirectionally aligned composites*, Polymer Composites, Vol.5 (4), October 1984, 327-333.
- Tandon G.P. and Weng G.J., *Average stress in the matrix and effective moduli of randomly oriented composites*, Composites Sci. Technol., 27, 1986, 111-132.
- Taya M., Chou T.W., *On two kinds of ellipsoidal inhomogeneities in an infinite elastic body: an application to a hybrid composite*, Int. J. Solids Struct., Vol.17, 1981, 553-563.
- Taya M., Mura T., *On stiffness and strength of an aligned short-fiber reinforced composite containing fiber-end cracks under uniaxial applied stress*, J. Appl. Mech. Vol.48 (2), 1981, 361-367.
- Taya M., Dunn M.L., Derby B., Walker J., *Thermal residual stress in a two-dimensional in-plane misoriented short fiber composite*, Appl. Mech. Rev. 43, 1990, S294-S303.
- Tsai S.W., Pagano N.J., *Invariant properties of composite materials*, Composite Materials Workshop, ed. by Tsai, Halpin and Pagano, Technomic Publishing Co., Stamford, Conn., 1969, 233.
- Tucker III C.L., Liang E., *Stiffness predictions for unidirectional short-fiber composites: review and evaluation*, Composites Science and Technology, 59 (5), 1999, 655-671.
- Van Krevelen D.W., *Properties of polymers*, Elsevier, Amsterdam, 1976.
- Verleye V, Dupret F., *Prediction of fibre orientation in complex injection moulded parts*, In: Siginer DA, Van Arsdale WE, Altan CE, Alexandrou AN, editors. Proceedings of the 1993 ASME Winter Annual Meeting. Applied Mechanics Division; 175, 139-163.
- Voigt W., *Über die Beziehung zwischen den beiden Elastizitätskonstanten isotroper Körper*, Wied. Ann, 38, 1889, 573.
- Voigt W., *Lehrbuch der Kristallphysik*, Teubner, Berlin, 1910.
- Wakashima K., Otsuka M., Umekawa S., *Thermal expansions of heterogeneous solids containing aligned ellipsoidal inclusions*, J. Comp. Mat., vol.8, 1974, 391-404.

Wang J., Pyrz R., *Prediction of the overall moduli of layered silicate-reinforced nanocomposites-part I: basic theory and formulas -part II: analyses*, Composites Science and Technology, 64, 2004, 925-944.

Weng G.J., *Some elastic properties of reinforced solids with special reference to isotropic ones containing spherical inclusions*, Int. J. Engng Sci., 22, 1984, 845-856.

Weng G.J., *The theoretical connection between Mori-Tanaka's theory and the Hashin-Shtrikman-Walpole bounds*, Int. J. Engng Sci., 28, 1990, 1111-1120.

Weng G.J., *Explicit evaluation of Willis' bounds with ellipsoidal inclusions*, Int. J. Engng Sci. 30, 1992, 83-92.

Wetherhold R.C., Scott P.D., *Prediction of thermoelastic properties in short-fiber composites using image analysis techniques*, Composites Science and Technology, 37, 1990, 393-410.

Willis J.R., *Bounds and self-consistent estimates for the overall properties of anisotropic composites*, J. Mech. Phys. Solids 25, 1977, 185-202.

Wu C.D., McCullough R.L., *Constitutive relationships for heterogeneous materials*, In : Developments in Composite Materials, ed. G.S. Holister, Applied Science Publishers, London, 1977.





## CONCLUSIONS

---

Nos travaux se sont intéressés à la prédiction des propriétés thermo-élastiques dans le cas de matériaux composites injectés et chargés. Pour cela, nous avons eu recours aux techniques d'homogénéisation, et plus particulièrement aux approches basées sur le modèle de Mori-Tanaka.

Pour prendre en compte l'effet de la structure sur les propriétés du composite, nous avons d'abord développé, dans une 1<sup>ère</sup> partie, des méthodes expérimentales permettant de mesurer l'état d'orientation des fibres dans la matrice.

Une première technique, bien connue dans la littérature et utilisant le MEB, permet de déterminer l'orientation tridimensionnelle des fibres à partir de l'analyse d'un seul plan de coupe : son principe consiste à travailler sous haute tension et à suivre le sens de fuite de la fibre dans la matrice grâce à la trace laissée par la fibre légèrement recouverte de matrice et apparaissant à l'une des extrémités de l'ellipse. La technique, applicable à n'importe quel composite renforcé de fibres, a été automatisée, ce qui permet d'analyser des grandes surfaces en des temps relativement courts (environ 4h15min par échantillon de 2.5 mm<sup>2</sup>, si on en traite 6 à la fois). Nous l'avons testée sur nos composites, à matrice polymérique (polyarylamide), renforcés de 30% à 50% en poids de fibres de verre et injectés sous forme de plaques de 1 mm et 3 mm d'épaisseur. Lors d'une coupe orthogonale, on a constaté que dans tous les cas, les fibres étaient majoritairement contenues dans le plan d'injection, mais curieusement orientées à  $\pm 30^\circ$  par rapport à la direction d'injection. Cette distribution aberrante est en fait attribuée à la coupe orthogonale sur laquelle la plupart des fibres apparaissent comme des cercles (et non des ellipses) : en effet, on a montré qu'une petite variation sur la mesure des dimensions d'un cercle entraîne de grandes variations des résultats d'orientation, alors que les mêmes dispersions sur les dimensions d'une ellipse engendrent une variation beaucoup plus faible des données d'orientation. Pour éliminer cette erreur expérimentale, une coupe inclinée par rapport à la direction d'injection est une solution intéressante, puisque la plupart des fibres y apparaîtront comme des ellipses.

Nous avons alors mis au point une nouvelle technique, applicable pour les matériaux composites mis en forme par injection. En effet, ce procédé induit une distribution des fibres majoritairement orientées dans le plan d'injection et cela nous a permis de développer une méthode, qui consiste en une coupe inclinée à  $45^\circ$  dans l'épaisseur de la pièce : un critère simple permet alors de déduire l'orientation

tridimensionnelle de chaque fibre, si bien qu'il n'est plus nécessaire de suivre le sens de fuite de la fibre dans la matrice. Cette technique, qui a aussi été automatisée pour manipuler de grandes surfaces, présente un certain nombre d'avantages par rapport à la première technique qui utilise la trace de la fibre :

- tout d'abord, elle gagne en précision puisque les données d'orientation sont basées sur la mesure de l'angle  $\phi$  dans le plan d'analyse, déterminé avec précision par le système d'analyse d'images ; mais aussi parce que l'erreur expérimentale induite sur les fibres parallèles au sens d'écoulement (la majorité des fibres) est réduite, car la plupart d'entre elles apparaissent comme des ellipses sur le plan de coupe ;
- d'autre part, le plan de coupe est plus large que l'épaisseur de la pièce, ce qui permet une description plus fine de l'évolution de l'orientation en fonction de l'épaisseur ;
- enfin, la technique de la coupe à  $45^\circ$  dans l'épaisseur est beaucoup plus rapide (environ 2h50min par échantillon de  $2.5 \text{ mm}^2$ , si on en traite 6 à la fois), car chaque image prise au MEB ne nécessite d'être analysée qu'une seule fois.

De cette manière, il est possible de mesurer l'état d'orientation localement ou en moyenne dans le volume d'un échantillon et de le caractériser sous forme de tenseurs d'orientation ou de fonctions de distribution de probabilité d'orientation. Ces outils mathématiques sont indispensables pour intégrer l'effet de l'orientation des fibres dans les modèles micromécaniques.

Il est utile aussi de souligner que Moldflow®, et en général les codes de calcul simulant l'injection, ne fournissent les données d'orientation que sous forme de tenseurs d'ordre 2 : cette description de l'orientation est restrictive, car la plupart des modèles d'homogénéisation nécessitent les fonctions de distribution d'orientation ou des tenseurs d'orientation d'ordre 4.

Quand l'aspect microstructural du composite est bien défini (expérimentalement ou à l'aide des logiciels de simulation), nous pouvons utiliser plusieurs approches afin de prédire les propriétés thermo-élastiques du composite (modules et coefficients de dilatation) en fonction de l'orientation des fibres et en fonction de la température. Notons que cette dernière démarche est très importante, car jusqu'à aujourd'hui, le comportement du composite en cours de refroidissement programmé dans les codes de simulation tels que Moldflow® n'est pas thermo-dépendant et que la prise en compte de la distribution d'orientation n'est pas implantée pour les coefficients de dilatation ; la prédiction des retraits et des déformées, qui nécessite un calcul thermo-mécanique, est alors imprécise. Dans nos modèles, le facteur température est incorporé en considérant les propriétés de la matrice en fonction de la température.

Une première approche, qu'on a appelé méthode directe de Mori-Tanaka, utilise la formule générale de Mori-Tanaka pour un composite constitué d'une matrice et de N phases : l'orientation des fibres est directement prise en compte via des opérations de moyennes spatiales.

Une 2<sup>ème</sup> approche, qu'on a appelé procédure en deux étapes, consiste à calculer par Mori-Tanaka les propriétés d'un composite fictif où toutes les fibres sont alignées, puis à incorporer l'orientation des fibres en moyennant soit le tenseur des rigidités, soit le tenseur des souplesses, sur toutes les orientations possibles.

Nous voulons ici faire une synthèse globale sur la prédiction des propriétés thermo-élastiques par les différentes approches citées. Il ressort de cette étude qu'à basse comme à haute température :

- la méthode directe de Mori-Tanaka permet de prédire correctement les propriétés du composite, mais la fonction de distribution d'orientation est dans certains cas nécessaire (donc les données d'orientation issues des prédictions par Moldflow® ne sont pas suffisantes),
- la procédure en deux étapes conduit à des résultats en bon accord avec l'expérience si les rigidités sont moyennées et si le tenseur d'orientation d'ordre 4 est connu exactement,
- la méthode directe de Mori-Tanaka et la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités sont aptes à prédire les propriétés thermo-élastiques des composites, même pour un taux de fibres élevé (jusqu'à 31.6% de fibres en volume, soit 50% en poids) et à haute température, c'est-à-dire pour un contraste de propriétés entre phases grand,
- la méthode directe de Mori-Tanaka et la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités et utilise le tenseur d'ordre 4 expérimental sous-estiment le coefficient de dilatation  $\alpha_{33}$  dans l'épaisseur à haute température (écarts avec l'expérience supérieurs à 30%) ; cela peut être dû au comportement de la matrice, qui semble être isotrope transverse ;
- la procédure en deux étapes conduit à de mauvaises prédictions si les souplesses sont moyennées et ce, même si le tenseur d'ordre 4 est connu exactement,
- pour la procédure en deux étapes, aucune des équations de fermeture classiquement utilisées pour estimer le tenseur d'orientation d'ordre 4 à partir du tenseur d'ordre 2 ne donne des résultats satisfaisants à la fois pour les modules et les coefficients de dilatation.

Plutôt que de tester d'autres équations de fermeture, nous proposons une méthode simple qui permet d'évaluer le tenseur d'ordre 4 à partir du tenseur d'ordre 2, et ce sans utiliser les équations de fermeture existantes : le principe repose sur l'utilisation d'une fonction capable de décrire la forme de la distribution d'orientation des fibres. C'est en effet une solution prometteuse, car combinée aux simples données d'un tenseur d'ordre 2 (apporté par exemple par un code de calcul tel que Moldflow®), elle permet sa propre évaluation du tenseur d'ordre 4 et fournit la fonction de distribution d'orientation des fibres.

Dans le cas de l'injection et pour une distribution bidimensionnelle des fibres, la fonction de Kacir à un paramètre donne des résultats encourageants ; mais on est conscient que cette fonction est trop

simple, car l'utilisation d'un seul paramètre ne permet pas de faire varier le tenseur d'ordre 4 pour un tenseur d'ordre 2 donné. Or on sait que pour un tenseur d'ordre 2, plusieurs distributions d'orientation de formes différentes sont possibles, donc plusieurs tenseurs d'ordre 4 peuvent être obtenus. Un travail dans ce sens, plus approfondi, doit être réalisé.

Notons que la procédure en deux étapes peut être appliquée aux distributions de renforts ayant un comportement isotrope transverse dans la direction d'écoulement ; c'est le cas notamment des fibres de carbone.

## PERSPECTIVES

---

On a montré que la procédure en deux étapes, qui consiste d'abord à déterminer les propriétés du matériau unidirectionnel homogène équivalent par la méthode de Mori-Tanaka, puis de moyenniser ces propriétés en fonction de la distribution d'orientation des fibres, donnait de bonnes prédictions des propriétés thermo-élastiques (jusqu'à un taux pondéral de fibres de 50%) à condition de pouvoir décrire correctement cette distribution d'orientation. Si on veut prédire les propriétés thermo-élastiques à partir de la simulation d'un écoulement, le principal point de blocage est le choix d'une bonne équation de fermeture qui permet, à partir du tenseur d'orientation d'ordre 2, d'évaluer le tenseur d'ordre 4.

Il est donc essentiel à ce stade de mener une étude plus approfondie encore, afin de :

- corrélérer la distribution d'orientation normalement orthotrope aux valeurs des tenseurs d'orientation d'ordre 4 ;
- être plus exhaustif dans l'étude des équations de fermeture et comparer les différents tenseurs d'ordre 4 prédits au tenseur expérimental, en se plaçant dans le repère principal d'orientation ;
- généraliser la fonction de Kacir à deux paramètres quand on travaille dans le plan : le premier paramètre pourra être déterminé par la composante  $a_{11}$ , le deuxième jouant sur les composantes du tenseur d'ordre 4 ;
- étendre la fonction de Kacir afin de tenir compte d'une distribution réelle des fibres, c'est-à-dire tridimensionnelle. Nous avons proposé, par exemple, une solution qui consiste à considérer le produit de deux fonctions de Kacir ;
- tester d'autres fonctions mathématiques, telles que celle proposée par Fu et Lauke [1996].

On réalise donc qu'un travail plus approfondi mérite d'être mené pour trouver la fonction la mieux appropriée et parvenir à estimer de cette manière un tenseur d'ordre 4 plus proche de la réalité que ce qu'on obtient actuellement avec les hypothèses de fermeture.

Par ailleurs, nous avons mis en évidence dans cette étude que la méthode directe de Mori-Tanaka, ainsi que la procédure en deux étapes qui moyenne les rigidités et utilise le tenseur expérimental d'ordre 4, sous-estime le coefficient de dilatation  $\alpha_{33}$  dans l'épaisseur à haute température. Ces

différences peuvent être attribuées au caractère isotrope transverse de la matrice, qui a un coefficient  $\alpha_{33}$  deux fois plus grand que les deux autres coefficients  $\alpha_{11}$  et  $\alpha_{22}$ . Dans nos modèles, ce comportement de la matrice a été ignoré, puisqu'on a considéré qu'elle était isotrope. D'abord dans un but de compréhension physique, il faudrait s'assurer du comportement anisotrope de la matrice en étudiant sa microstructure. La distribution des orientations des renforts lamellaires, mais aussi de la microstructure cristalline induite, pourrait faire l'objet d'étude en diffraction des rayons X aux grands et aux petits angles. Ensuite, il serait utile de parvenir à mesurer les propriétés élastiques de la matrice dans la direction 3 et de modéliser son comportement réel, pour voir l'influence que cela aurait sur les prédictions des modules d'Young et des coefficients de dilatation du composite ; en particulier, on verrait dans quelle mesure il est possible d'améliorer les prédictions de  $\alpha_{33}$ .

Enfin, il est important de noter que même si les logiciels de simulation ont intégré les équations de calcul d'orientation, lorsqu'on compare par exemple les prédictions de Moldflow® aux données mesurées expérimentalement, on constate que des écarts importants apparaissent (supérieurs à 30% parfois). Ils trouvent leur origine dans le modèle utilisé (modèle de Folgar et Tucker), car il existe deux paramètres,  $C_1$  et  $D_z$ , dont les valeurs exactes ne sont pas connues. On a montré qu'il était possible d'ajuster le niveau d'orientation au plus près des données expérimentales en jouant sur deux paramètres, mais cette façon de procéder est empirique et dépend sans doute de la géométrie des fibres. De plus, même si on parvient à trouver le meilleur couple ( $C_1$ ,  $D_z$ ) correspondant à nos matériaux, nous ne savons pas comment ces paramètres évoluent en fonction des milieux considérés, ni même en fonction de l'épaisseur des plaques injectées. De plus, il semble que l'orientation des fibres dans l'écoulement s'établisse plus vite dans la simulation que dans la réalité. Il apparaît indispensable, à l'avenir, de chercher à mieux maîtriser ces paramètres et leur influence, et d'une manière plus générale, d'améliorer le modèle de calcul de l'orientation, car la distribution des fibres est un facteur très important qui influence fortement les propriétés du composite.

Une alternative serait que les logiciels de simulation parviennent à décrire l'évolution du tenseur d'ordre 4, et non plus seulement du tenseur d'ordre 2, avec le temps. La qualité des résultats obtenus devrait alors être évaluée en les confrontant aux mesures expérimentales.

## **Remerciements**

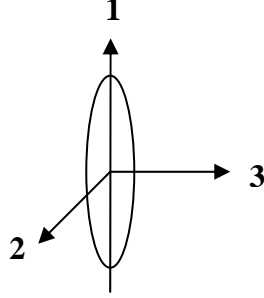
Nous voudrions remercier J-M Rossignol, M. Laplanche et J. Correa de la société LEGRAND, P. Kennedy, R. Zheng et H. Alglave de la société MOLDFLOW, V. Leo de la société SOLVAY, ainsi que D. Delaunay et R. Le Goff du laboratoire thermocinétique de Nantes, R. Fulchiron et S. Karpp-Pfordt du LMPB de l'UCB de Lyon pour les discussions enrichissantes et les travaux effectués au sein du projet multipartenaires FISH.

## **ANNEXE 1**

## EXPRESSIONS DU TENSEUR D'ESHELBY

En milieu isotrope

Dans le cas où la matrice est isotrope et où l'axe de révolution des ellipsoïdes est l'axe 1 (avec la dimension  $a_2 = a_3 < a_1$ ), les composantes du tenseurs d'Eshelby s'expriment par [Brown et Clarke, 1975 ; Mura, 1991] :



$$\left\{ \begin{array}{l} E_{1111} = \frac{1}{2(1-\nu_m)} \left\{ 1 - 2\nu_m + \frac{3s^2 - 1}{s^2 - 1} - \left[ 1 - 2\nu_m + \frac{3s^2}{s^2 - 1} \right] g \right\} \\ E_{2222} = E_{3333} = \frac{3}{8(1-\nu_m)} \frac{s^2}{s^2 - 1} + \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left[ 1 - 2\nu_m - \frac{9}{4(s^2 - 1)} \right] g \\ E_{2233} = E_{3322} = \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{s^2}{2(s^2 - 1)} - \left[ 1 - 2\nu_m + \frac{3}{4(s^2 - 1)} \right] g \right\} \\ E_{2211} = E_{3311} = -\frac{1}{2(1-\nu_m)} \frac{s^2}{s^2 - 1} + \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{3s^2}{s^2 - 1} - (1 - 2\nu_m) \right\} g \\ E_{1122} = E_{1133} = -\frac{1}{2(1-\nu_m)} \left[ 1 - 2\nu_m + \frac{1}{s^2 - 1} \right] + \frac{1}{2(1-\nu_m)} \left[ 1 - 2\nu_m + \frac{3}{2(s^2 - 1)} \right] g \\ E_{2323} = E_{3232} = \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{s^2}{2(s^2 - 1)} + \left[ 1 - 2\nu_m - \frac{3}{4(s^2 - 1)} \right] g \right\} \\ E_{1212} = E_{1313} = \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ 1 - 2\nu_m - \frac{s^2 + 1}{s^2 - 1} - \frac{1}{2} \left[ 1 - 2\nu_m - \frac{3(s^2 + 1)}{s^2 - 1} \right] g \right\} \end{array} \right.$$

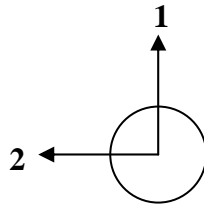
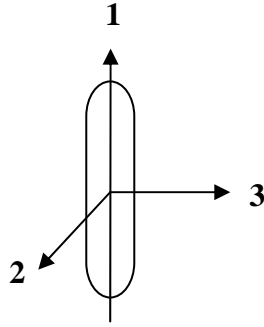
où  $\nu_m$  est le coefficient de Poisson de la matrice et  $g$  est défini par :

$$g = \frac{s}{(s^2 - 1)^{3/2}} \left( s(s^2 - 1)^{1/2} - \text{Arc cosh } s \right)$$

et  $s = \frac{a_1}{a_3} > 1$  est le rapport de forme de l'ellipsoïde.



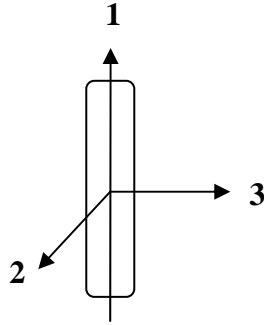
Pour des sphéroïdes aplatis (« oblate spheroid » en anglais), d'axe de symétrie parallèle à l'axe 3 (tels que  $a_1 = a_2 > a_3$ ), le tenseur d'Eshelby est donné par :



$$\left\{ \begin{array}{l}
 I_1 = \frac{2\pi s}{(1-s)^2} (\text{ArcCos}(s) - s(1-s^2)^{\frac{1}{2}}) \\
 I_3 = 4\pi - 2I_1 \\
 E_{1111} = E_{2222} = \frac{3}{8\pi(1-\nu_m)} \left( \pi - \frac{(I_1 - I_3)}{4(s^2 - 1)} \right) + \frac{1 - 2\nu_m}{8\pi(1-\nu_m)} I_1 \\
 E_{3333} = \frac{3}{8\pi(1-\nu_m)} \left( \frac{4}{3}\pi - \frac{2}{3}s^2 \frac{(I_1 - I_3)}{s^2 - 1} \right) + \frac{1 - 2\nu_m}{8\pi(1-\nu_m)} I_3 \\
 E_{1122} = E_{2211} = \frac{1}{8\pi(1-\nu_m)} \left( \pi - \frac{(I_1 - I_3)}{4(s^2 - 1)} \right) - \frac{1 - 2\nu_m}{8\pi(1-\nu_m)} I_1 \\
 E_{1133} = E_{2233} = \frac{1}{8\pi(1-\nu_m)} s^2 \frac{(I_1 - I_3)}{s^2 - 1} - \frac{1 - 2\nu_m}{8\pi(1-\nu_m)} I_1 \\
 E_{3311} = E_{3322} = \frac{1}{8\pi(1-\nu_m)} \frac{(I_3 - I_1)}{1 - s^2} - \frac{1 - 2\nu_m}{8\pi(1-\nu_m)} I_3 \\
 E_{1212} = \frac{1}{8\pi(1-\nu_m)} \left( \pi - \frac{(I_1 - I_3)}{4(s^2 - 1)} \right) + \frac{1 - 2\nu_m}{16\pi(1-\nu_m)} 2I_1 \\
 E_{2323} = E_{1313} = \frac{1}{16\pi(1-\nu_m)} (1 + s^2) \frac{(I_1 - I_3)}{s^2 - 1} + \frac{1 - 2\nu_m}{16\pi(1-\nu_m)} (I_1 + I_3) \\
 \text{Pour les autres composantes, } E_{ijkl} = 0
 \end{array} \right.$$

où  $\nu_m$  est le coefficient de Poisson de la matrice et  $s = \frac{a_3}{a_1} < 1$  est le rapport de forme du sphéroïde.

Pour des disques ou des plaquettes (« penny shape » en anglais), de normale parallèle à l'axe 3 (avec  $a_1 = a_2 \pi a_3$ ), le tenseur d'Eshelby s'écrit :



$$\left\{ \begin{array}{l} E_{1111} = E_{2222} = \frac{13 - \nu_m}{32(1 - \nu_m)} \pi s \\ E_{3333} = 1 - \frac{1 - 2\nu_m}{1 - \nu_m} \frac{\pi}{4} s \\ E_{1122} = E_{2211} = \frac{8\nu_m - 1}{32(1 - \nu_m)} \pi s \\ E_{1133} = E_{2233} = \frac{2\nu_m - 1}{8(1 - \nu_m)} \pi s \\ E_{3311} = E_{3322} = \frac{\nu_m}{1 - \nu_m} \left( 1 - \frac{4\nu_m + 1}{8\nu_m} \pi s \right) \\ E_{1212} = \frac{7 - 8\nu_m}{32(1 - \nu_m)} \pi s \\ E_{2323} = E_{1313} = \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{\nu_m - 2}{1 - \nu_m} \frac{\pi}{4} s \right) \\ \text{Pour les autres composantes, } E_{ijkl} = 0 \end{array} \right.$$

où  $\nu_m$  est le coefficient de Poisson de la matrice et  $s = \frac{a_3}{a_1} < 1$  est le rapport de forme de la plaquette.

Quand les disques sont très fins ( $s \rightarrow 0$ ), les seules composantes non nulles sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} E_{3333} = 1 \\ E_{3311} = E_{3322} = \frac{\nu_m}{1 - \nu_m} \\ E_{3131} = E_{3232} = \frac{1}{2} \end{array} \right.$$

Pour des inclusions sphériques, les expressions se simplifient :

$$\begin{cases} E_{1111} = E_{2222} = E_{3333} = \frac{7 - 5\nu_m}{15(1 - \nu_m)} \\ E_{1122} = E_{2233} = E_{3311} = \frac{5\nu_m - 1}{15(1 - \nu_m)} \\ E_{1212} = E_{2323} = E_{3131} = \frac{4 - 5\nu_m}{15(1 - \nu_m)} \end{cases}$$

Pour des cylindres circulaires ( $s \rightarrow \infty$ ), on a :

$$\begin{cases} E_{3333} = 0 \\ E_{1111} = E_{2222} = \frac{5 - 4\nu_m}{8(1 - \nu_m)} \\ E_{1122} = E_{2211} = \frac{4\nu_m - 1}{8(1 - \nu_m)} \\ E_{1133} = E_{2233} = \frac{\nu_m}{2(1 - \nu_m)} \\ E_{3311} = E_{3322} = 0 \\ E_{1212} = \frac{3 - 4\nu_m}{8(1 - \nu_m)} \\ E_{3131} = E_{3232} = \frac{1}{4} \end{cases}$$

### En milieu isotrope transverse

Dans le cas où le milieu est isotrope transverse autour de l'axe 3, le tenseur d'Eshelby s'exprime par :

$$E_{ijkl} = \frac{1}{8\pi} C_{pqmn} (\bar{G}_{ipjq} + \bar{G}_{jpiq}) \quad (2.33)$$

où  $C$  est la matrice de rigidité du milieu.

Dans ce cas, le tenseur  $\bar{G}$  a été calculé [Lin et Mura, 1973] et on a les relations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{G}_{1111} = \bar{G}_{2222} = \frac{\pi}{2} \int_0^1 \Delta(1-x^2) \{ [C_{44}(1-x^2) + C_{33}s^2x^2] \left[ (3\frac{C_{11}-C_{12}}{2} + C_{11})(1-x^2) + 4C_{44}s^2x^2 \right] \right. \\ \quad \left. - (C_{13} + C_{44})^2 s^2 x^2 (1-x^2) \} dx \\ \bar{G}_{3333} = 4\pi \int_0^1 \Delta s^2 x^2 [C_{11}(1-x^2) + C_{44}s^2x^2] \left[ \frac{C_{11}-C_{12}}{2}(1-x^2) + C_{44}s^2x^2 \right] dx \\ \bar{G}_{1122} = \bar{G}_{2211} = \frac{\pi}{2} \int_0^1 \Delta(1-x^2) \{ [C_{44}(1-x^2) + C_{33}s^2x^2] \left[ (\frac{C_{11}-C_{12}}{2} + 3C_{11})(1-x^2) + 4C_{44}s^2x^2 \right] \right. \\ \quad \left. - 3(C_{13} + C_{44})^2 s^2 x^2 (1-x^2) \} dx \\ \bar{G}_{1133} = \bar{G}_{2233} = 2\pi \int_0^1 \Delta s^2 x^2 \left\{ (C_{11} + \frac{C_{11}-C_{12}}{2})(1-x^2) + 2C_{44}s^2x^2 \right\} [C_{44}(1-x^2) + C_{33}s^2x^2] \right. \\ \quad \left. - (C_{13} + C_{44})^2 s^2 x^2 (1-x^2) \right\} dx \\ \bar{G}_{3311} = \bar{G}_{3322} = 2\pi \int_0^1 \Delta(1-s^2) [C_{11}(1-x^2) + C_{44}s^2x^2] \left[ \frac{C_{11}-C_{12}}{2}(1-x^2) + C_{44}s^2x^2 \right] dx \\ \bar{G}_{1212} = \frac{\pi}{2} \int_0^1 \Delta(1-s^2)^2 \{ (C_{13} + C_{44})^2 s^2 x^2 - (C_{11} - \frac{C_{11}-C_{12}}{2}) [C_{44}(1-x^2) + C_{33}s^2x^2] \} dx \\ \bar{G}_{1313} = \bar{G}_{2323} = -2\pi \int_0^1 \Delta(C_{13} + C_{44}) s^2 x^2 (1-s^2) \left[ \frac{C_{11}-C_{12}}{2}(1-x^2) + C_{44}s^2x^2 \right] dx \end{array} \right.$$

où  $s$  est le rapport de forme des renforts et  $\Delta$  est défini par :

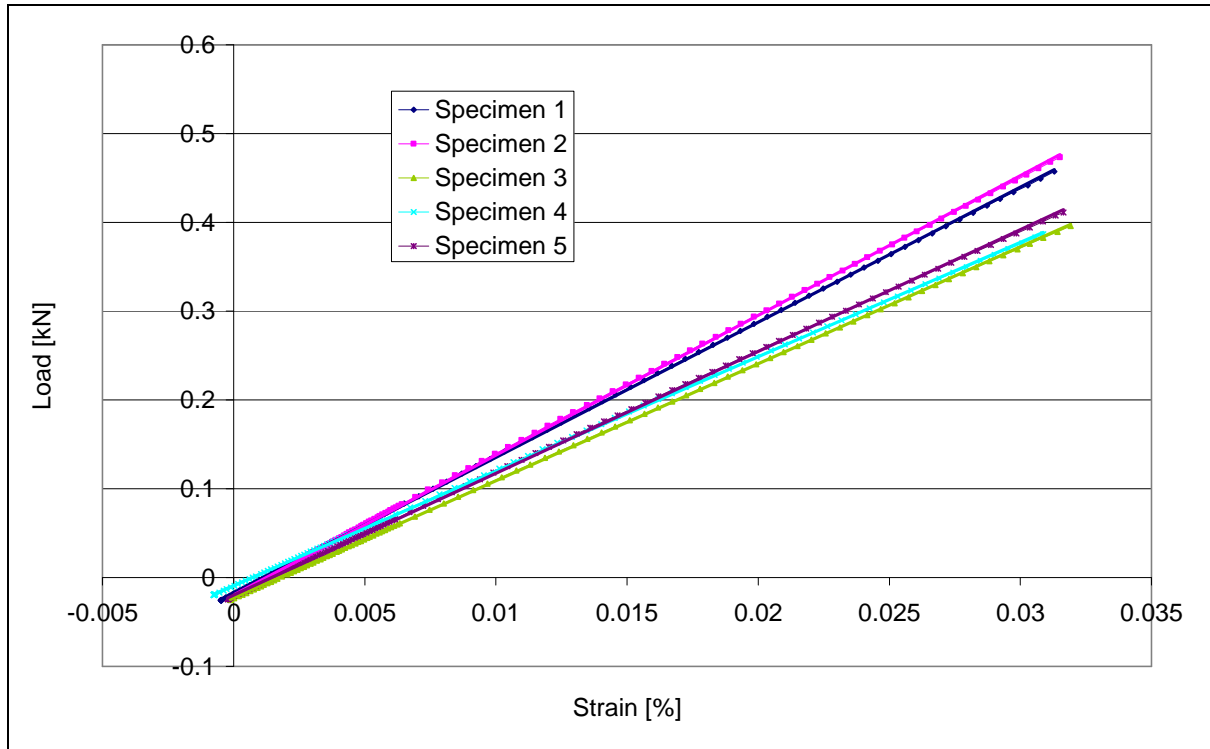
$$\Delta^{-1} = \left[ \frac{C_{11}-C_{12}}{2}(1-x^2) + C_{44}s^2x^2 \right] \{ [C_{11}(1-x^2) + C_{44}s^2x^2] [C_{44}(1-x^2) + C_{33}s^2x^2] - (C_{13} + C_{44})^2 s^2 x^2 (1-x^2) \}$$



## ANNEXE 2

### ESSAIS DE TRACTION SUR LA MATRICE 6002

A température ambiante (23°C)

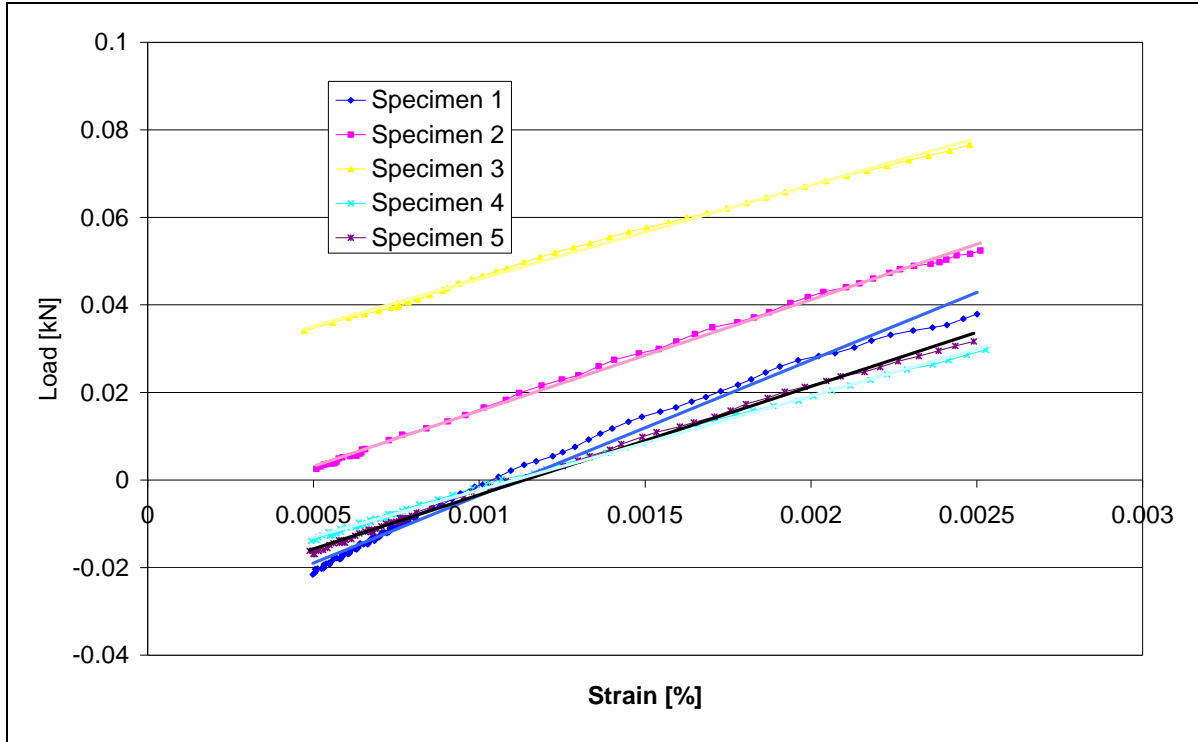


**Figure 1** : essais de traction sur la matrice 6002 à 23°C

	Young's modulus [Mpa]
Sample 1	5095
Sample 2	5268
Sample 3	5057
Sample 4	4925
Sample 5	5236
Average value	5116
Standard deviation S.D.	139
Covariance	3
Average+2 S.D.	5095
Average-2 S.D.	5395
Minimum	4925
Maximum	5268

**Tableau 1** : modules d'Young à 23°C mesurés par essais de traction sur la matrice 6002

A 100°C ( $T > T_g$ )



**Figure 2** : essais de traction sur la matrice 6002 à 100°C

	Young's modulus [MPa]
Sample 1	1010
Sample 2	823
Sample 3	806
Sample 4	799
Sample 5	906
Average value	868.7
Standard deviation S.D.	89.8

**Tableau 2** : modules d'Young à 100°C mesurés par essais de traction sur la matrice 6002

### ANNEXE 3

## ESSAIS DE TRACTION SUR LE GRADE 1002 – plaque de 1 mm à 120°C

### MESURE DE $E_{11}$

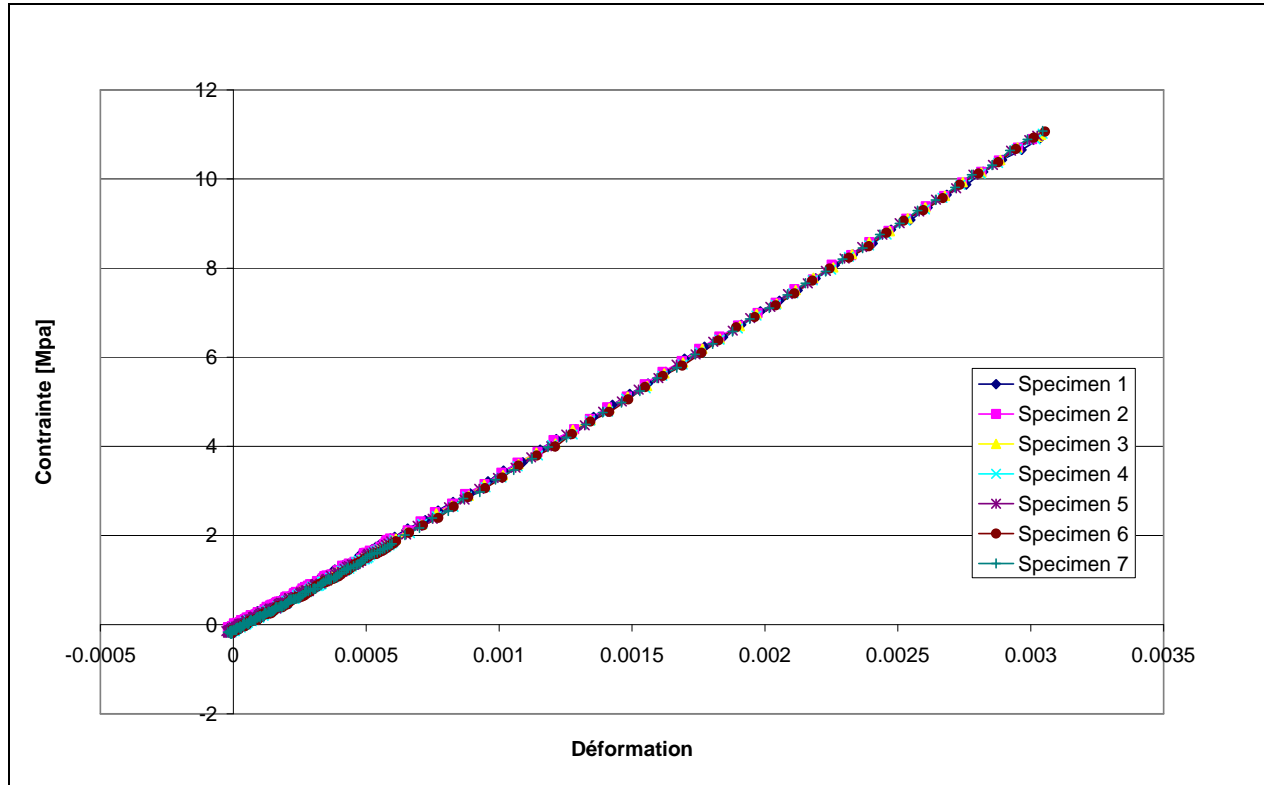


Figure 3 : essais de traction à 120°C dans la direction longitudinale. Plaques de 1 mm, grade 1002

	Plaque 1	Plaque 2	Plaque 3
Echantillon 1	3668.8761	3671.32681	3897.97865
Echantillon 2	3691.7446	3691.25054	3862.00807
Echantillon 3	3711.87367	3679.53368	3841.70665
Echantillon 4	3714.72955	3678.71431	3821.76595
Echantillon 5	3721.97241	3693.92441	3786.84767
Echantillon 6	3735.70791	3693.65834	3775.02542
Echantillon 7	3743.97877	3680.54804	3769.61991
<b>Moyenne [MPa]</b>	<b>3712.69757</b>	<b>3684.13659</b>	<b>3822.13605</b>
<b>Déviat. standard</b>	<b>25.6845217</b>	<b>8.79990084</b>	<b>48.214192</b>

Tableau 3 : modules d'Young  $E_{11}$  à 120°C mesurés par essais de traction sur le grade 1002

	E [MPa]	Dévia. stand.
Plaque 1	3712.70	25.68
Plaque 2	3684.14	8.80
Plaque 3	3822.14	48.21
<b>Moyenne</b>	<b>3739.66</b>	<b>19.77</b>

Tableau 4 : valeur moyenne du module d'Young  $E_{11}$  à 120°C pour grade 1002 - 1 mm



MESURE DE  $E_{22}$

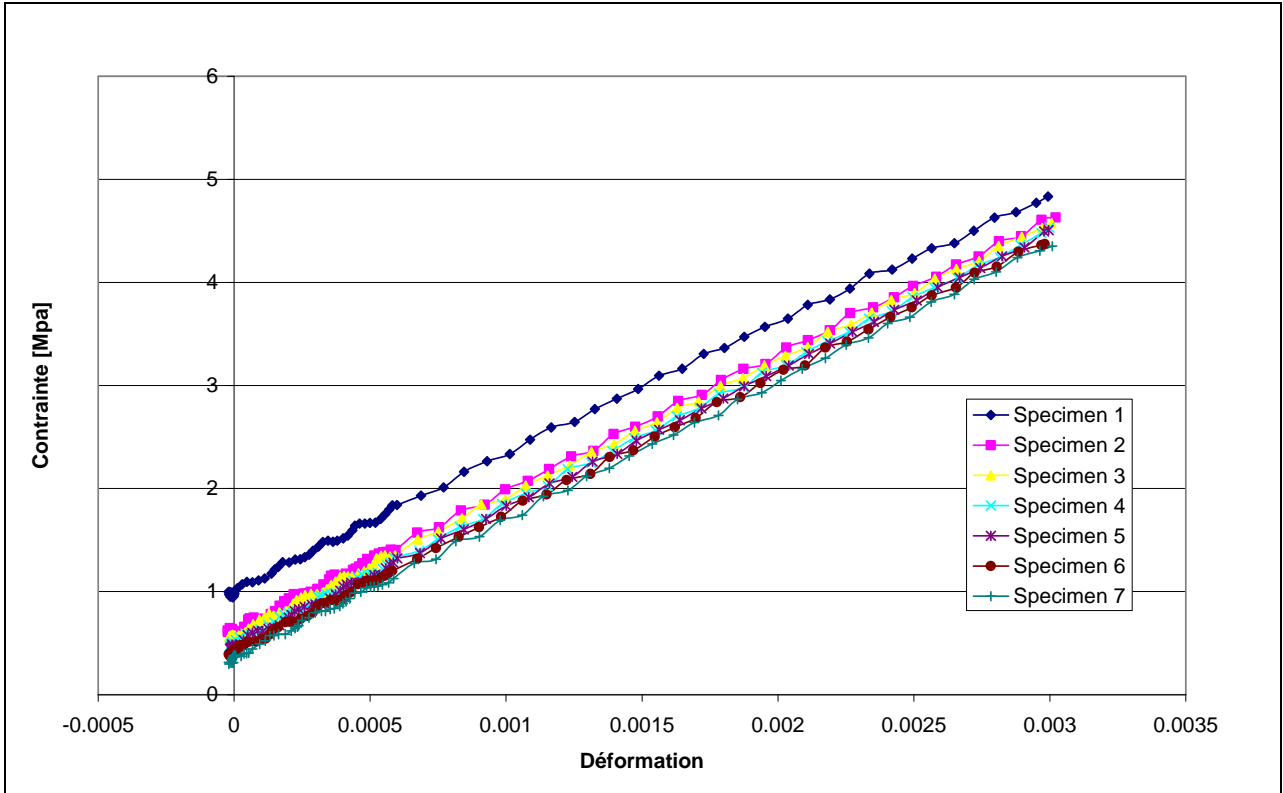


Figure 4 : essais de traction à 120°C dans la direction transverse. Plaques de 1 mm, grade 1002

	Plaque 1	Plaque 2	Plaque 3
Echantillon 1	1281.46142	1191.09998	1211.70629
Echantillon 2	1325.73753	1185.81448	1248.05974
Echantillon 3	1324.31393	1167.65964	1270.00184
Echantillon 4	1339.03525	1187.01695	1260.55619
Echantillon 5	1334.74941	1171.74502	1273.73596
Echantillon 6	1342.76909	1178.96931	1290.96664
Echantillon 7	1343.22647	1170.77377	1287.32838
<b>Moyenne [MPa]</b>	<b>1327.32758</b>	<b>1179.01131</b>	<b>1263.19358</b>
<b>Déviat. standard</b>	<b>21.5973864</b>	<b>9.18356784</b>	<b>27.0747592</b>

Tableau 5 : modules d'Young  $E_{22}$  à 120°C mesurés par essais de traction sur le grade 1002

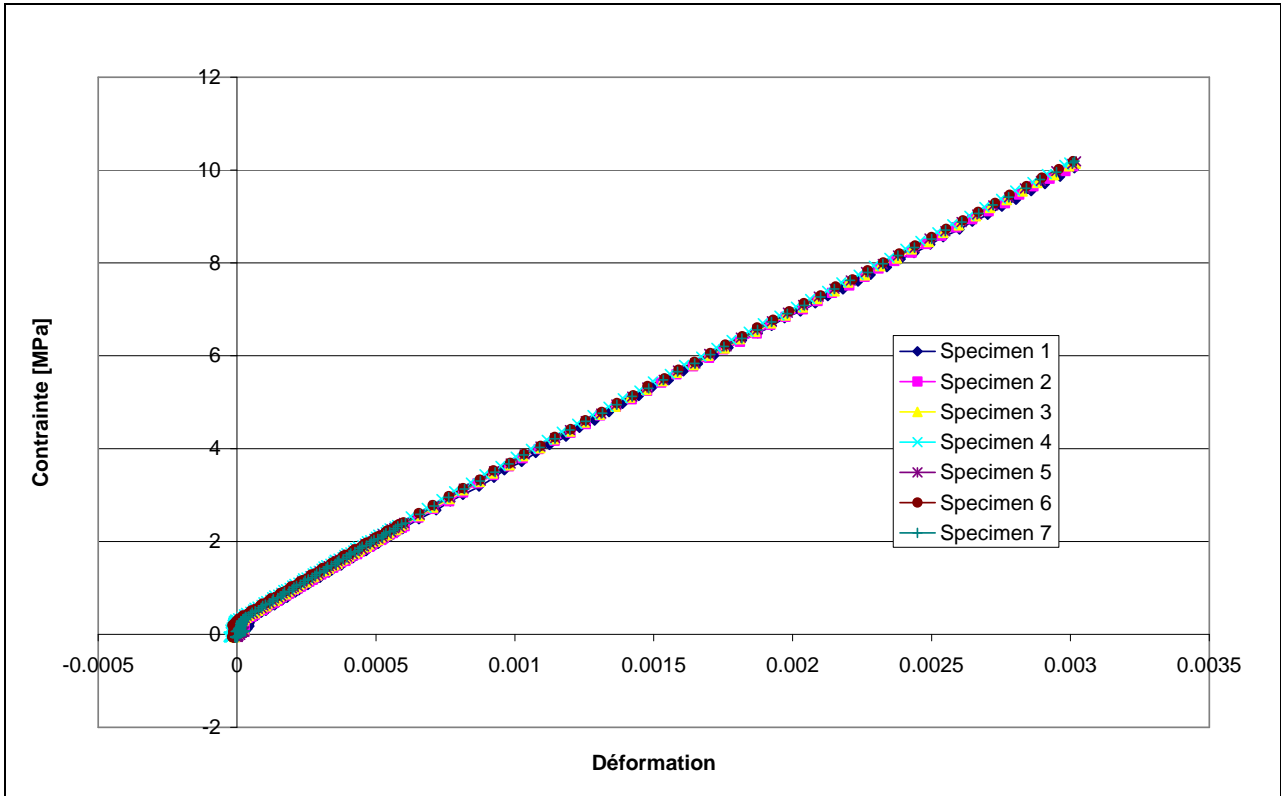
	E [MPa]	Dévia. stand.
Plaque 1	1327.33	21.60
Plaque 2	1179.01	9.18
Plaque 3	1263.19	27.07
<b>Moyenne</b>	<b>1256.51</b>	<b>9.17</b>

Tableau 6 : valeur moyenne du module d'Young  $E_{22}$  à 120°C pour grade 1002 - 1 mm

## ANNEXE 4

### ESSAIS DE TRACTION SUR LE GRADE 1002 – plaque de 3 mm à 120°C

#### MESURE DE $E_{11}$



**Figure 5 :** essais de traction à 120°C dans la direction longitudinale. Plaques de 3 mm, grade 1002

	Plaque 1	Plaque 2	Plaque 3
Echantillon 1	3144.49675	3343.71649	3250.46586
Echantillon 2	3144.9282	3336.28638	3242.92387
Echantillon 3	3182.52512	3301.17747	3245.18659
Echantillon 4	3181.22	3348.14187	3244.77236
Echantillon 5		3331.31248	3250.6416
Echantillon 6			3247.35657
Echantillon 7			3250.69032
<b>Moyenne [MPa]</b>	<b>3163.29252</b>	<b>3332.12694</b>	<b>3247.43452</b>
<b>Déviat. standard</b>	<b>21.461725</b>	<b>18.4839788</b>	<b>3.22816613</b>

**Tableau 7 :** modules d'Young  $E_{11}$  à 120°C mesurés par essais de traction sur le grade 1002

	E [MPa]	Dévia. stand.
Plaque 1	3163.29	21.46
Plaque 2	3332.13	18.48
Plaque 3	3247.43	3.23
<b>Moyenne</b>	<b>3247.62</b>	<b>9.78</b>

**Tableau 8 :** valeur moyenne du module d'Young  $E_{11}$  à 120°C pour grade 1002 – 3 mm

MESURE DE  $E_{22}$

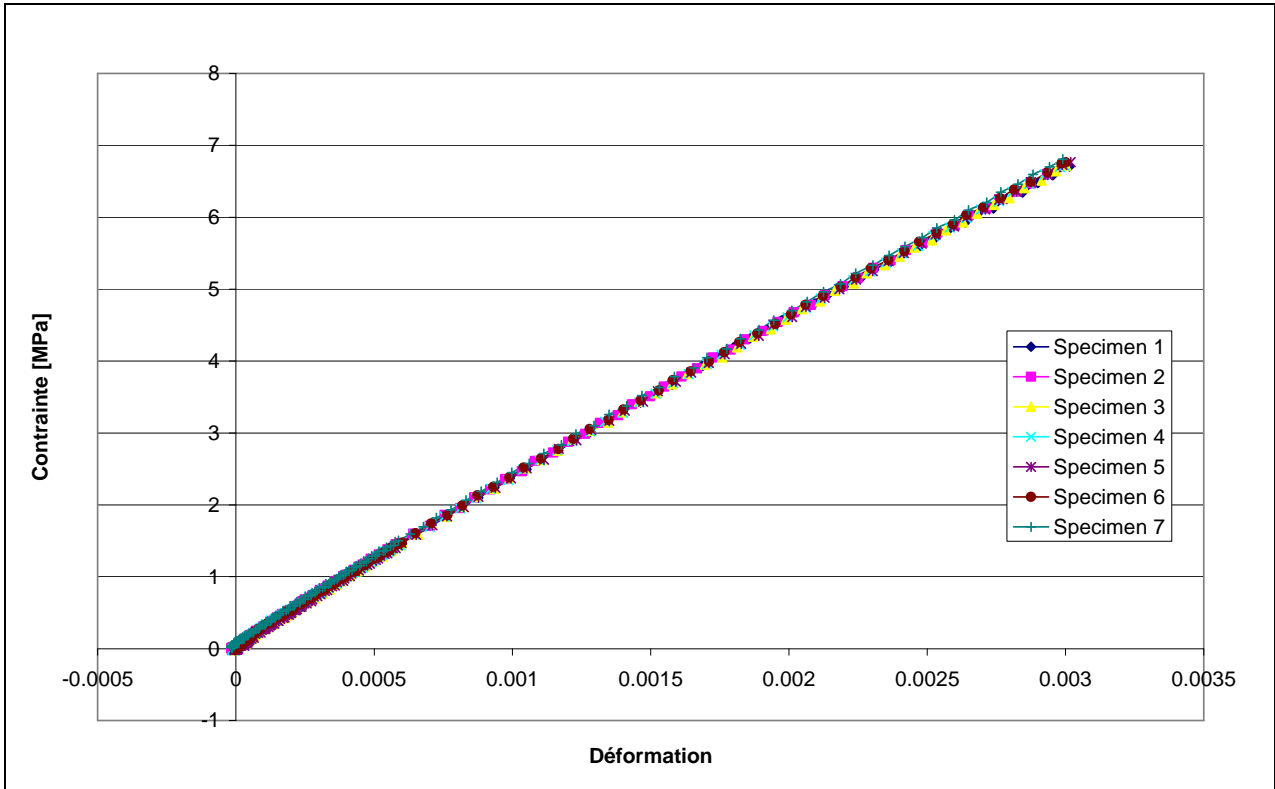


Figure 6 : essais de traction à 120°C dans la direction transverse. Plaques de 3 mm, grade 1002

	Plaque 1	Plaque 2	Plaque 3
Echantillon 1	2223.75862	2214.08586	2344.70969
Echantillon 2	2228.84127	2234.4553	2349.81901
Echantillon 3	2222.95747	2232.08914	2351.47269
Echantillon 4	2231.16194	2234.42064	2354.41082
Echantillon 5	2233.49178	2238.41129	2360.84581
Echantillon 6	2238.65319	2240.23162	2362.73629
Echantillon 7	2244.10502	2243.71743	2362.13002
<b>Moyenne [MPa]</b>	<b>2231.85276</b>	<b>2228.76273</b>	<b>2350.10305</b>
<b>Déviat. standard</b>	<b>7.67287174</b>	<b>9.84704476</b>	<b>4.06619359</b>

Tableau 9 : modules d'Young  $E_{22}$  à 120°C mesurés par essais de traction sur le grade 1002

	E [MPa]	Dévia. stand.
Plaque 1	2231.85	7.67
Plaque 2	2228.76	9.85
Plaque 3	2350.10	4.07
<b>Moyenne</b>	<b>2270.24</b>	<b>2.92</b>

Tableau 10 : valeur moyenne du module d'Young  $E_{22}$  à 120°C pour grade 1002 – 3 mm

## **PREDICTION DES PROPRIETES THERMO-ELASTIQUES D'UN COMPOSITE INJECTE ET CHARGE DE FIBRES COURTES**

**RESUME :** La réalisation des moules pour l'injection des thermoplastiques demande un gros investissement financier ; en conséquence, les industriels souhaitent parvenir à prédire correctement la géométrie finale des pièces injectées. Pour cela, un calcul rhéologique couplé à un calcul thermo-mécanique par éléments finis dans le solide doit être mené et requiert les propriétés du matériau. Aujourd'hui, les propriétés mécaniques des matériaux utilisées dans les codes de calcul ne sont généralement ni thermo-dépendantes, ni directement dépendantes de l'orientation locale des fibres. L'objectif de cette étude est de parvenir à prédire les propriétés élastiques et les coefficients de dilatation de composites injectés et chargés de fibres courtes, en ayant recours à des techniques d'homogénéisation. L'originalité du travail réside dans le fait d'estimer ces propriétés sur une large gamme de température en fonction de l'orientation locale des fibres. Une 1<sup>ère</sup> partie présente les techniques de mesure de l'état d'orientation des fibres : dans le cas particulier de l'injection où la plupart des fibres sont contenues dans un plan, nous avons mis au point une nouvelle méthode rapide et précise afin de déterminer l'orientation spatiale des fibres. Elle consiste à analyser l'image, prise au microscope électronique à balayage, d'un seul plan de coupe incliné par rapport à la direction d'injection. Dans une 2<sup>ème</sup> partie, les propriétés thermo-élastiques des composites sont obtenues par le modèle de Mori-Tanaka. Pour tenir compte de l'orientation, plusieurs méthodologies sont évaluées. Finalement, nous proposons d'utiliser une fonction capable de décrire la forme de la distribution d'orientation et dont les paramètres sont identifiés à partir du tenseur d'orientation d'ordre 2. Les prédictions obtenues sont cohérentes avec les mesures de modules d'Young et de coefficients de dilatation.

**Mots-clés :** injection, composites, thermoplastiques chargés de fibres courtes, propriétés thermo-élastiques, orientation des fibres, homogénéisation, modèle de Mori-Tanaka.

## **PREDICTION OF THE THERMOELASTIC PROPERTIES OF AN INJECTION MOLDED SHORT-FIBER COMPOSITE**

**ABSTRACT :** The production of molds for injection of thermoplastics is highly expensive, that is why industrialists would like to be able to correctly predict the final geometry of injected parts. To do it, a rheological calculation coupled to a thermo-mechanical calculation by finite elements, which requires the materials properties, must be carried out in the solid. Today, the mechanical properties that are used in the code are generally not dependent on temperature, neither directly dependent on the local fiber orientation. The purpose of this study is precisely to predict the elastic properties, as well as the thermal expansion coefficients of injection molded short-fiber composites, by using techniques of homogenization. The originality of the work is the estimation of the properties over a broad range of temperatures, as a function of the local fiber orientation. A 1<sup>st</sup> part presents the methods for measuring the fiber orientation state: in the particular case of injection, where the fibers lie as a majority in the injection plane, we have developed a new technique in order to determine the spatial fiber orientation, which is fast and accurate. It consists in analyzing the image, taken with a Scanning Electron Microscope, of a single section plane cut at a certain angle from the injection direction. In a 2<sup>nd</sup> part, the thermo-elastic composite properties are evaluated by Mori-Tanaka's model. To take the fiber orientation into account, several methodologies are tested. Eventually, we propose to use a function that is able to describe the shape of the orientation distribution and whose parameters are identified from the 2<sup>nd</sup>-rank orientation tensor. Predictions obtained in this way appear to be consistent with the measurements of Young's moduli and thermal expansion coefficients.

**Keywords :** injection, composites, short-fiber reinforced thermoplastics, thermo-elastic properties, fiber orientation, homogenization, Mori-Tanaka's model.

