



RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE



UNIVERSITÉ ABOU-BEKR BELKAÏD – TLEMCCEN

THÈSE LMD

Présentée à :

FACULTÉ DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Pour l'obtention du diplôme de :

DOCTORAT

Spécialité : Matériaux et Composites

Par :

Mme MIDOUN Amina

Sur le thème

Contribution à l'étude des comportements mécanique, thermique et électrique des matériaux composites à matrice polymère

Soutenue publiquement le 18 Avril 2026 à Tlemcen devant le jury composé de :

Mr HAMOUNI Mohammed	Professeur	Université de Tlemcen	Président
M ^{me} BENAHMED Hayat	MCA	Université de Tlemcen	Directrice de thèse
Mr LASRI Boumediène	Professeur	Université de Saida	Examinateur
Mr DALI YUCEF Boumediène	Professeur	Université de Tlemcen	Examinateur
M ^{me} HADJOU BELAID Zakia	Professeur	Université de Tlemcen	Examinatrice
Mr BENHAMOU Sidi Mohamed	Professeur	E.S.S.A. - Tlemcen	Examinateur

*Laboratoire de Recherche sur les Macromolécules
BP 119, 13000 Tlemcen - Algérie*

**بِسْمِ اللَّهِ الرَّحْمَنِ الرَّحِيمِ وَالصَّلَاةِ وَالسَّلَامِ عَلَى سَيِّدِنَا مُحَمَّدٍ صَلَّى
اللَّهُ عَلَيْهِ وَسَلَّمَ**

Louange à Allah, grâce à qui les bonnes actions se réalisent.

Louange à Allah qui nous a permis de franchir cette étape importante de notre parcours académique à travers cette thèse, fruit d'un effort soutenu et d'un succès que nous lui devons, à Lui, le Tout-Puissant.

Je dédie ce travail à mes chers et précieux parents, ma mère et mon père, véritables symboles de dévouement, d'amour, de patience et de prières.

À ma chère grand-mère, qu'Allah ait son âme, qui nous a quittés physiquement, mais dont les prières et les doux souvenirs demeurent à jamais gravés dans nos cœurs.

À mon cher mari, qui a été, à chaque instant, mon soutien indéfectible et le pilier de ce parcours.

À ma chère fille, la fleur de ma vie et la source inépuisable de mon bonheur.

À mes chères sœurs et à mon cher frère.

À toute ma famille, dont les marques d'amour et de soutien ne m'ont jamais fait défaut.

À tous les enseignants qui ont contribué de près ou de loin à ma formation durant toutes les années de Licence et de Master.

MIDOUN Amina

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS

LISTE DES TABLEAUX ET DES FIGURES

TABLE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS

Introduction générale	1
Références	4

Chapitre 1. Étude Bibliographique

A. Matériaux composites.....	5
1.1. Introduction.....	5
1.2. Définition d'un matériau composite.....	5
1.3. Constituants des matériaux composites.....	6
1.3.1. Matrice.....	6
1.3.2. Renfort.....	7
1.4. Caractéristiques des matériaux composites.....	8
1.5. Classification des matériaux composites.....	8
1.5.1. Classification suivant la nature des constituants.....	9
1.5.2. Matrices organiques.....	10
1.5.3. Classification selon la forme des constituants.....	12
1.5.3.1. Composites à fibres.....	12
1.5.3.2. Composites à particules.....	12
1.6. Interface matrice-renfort.....	13
1.7. Rôle de l'interface.....	14
1.8. Exemples d'applications des matrices et des renforts utilisés.....	15
1.8.1. Polyéthylène (PE).....	15
1.8.2. Fibres d'aramides (Kevlar).....	16
1.8.3. Fibres de Bore.....	18
1.8.4. Diborure de Titane (TiB ₂).....	19
1.9. Avantages et inconvénients des matériaux composites.....	20
B. Matériaux nanocomposites.....	20
1.1. Introduction.....	20
1.2. Définition d'un matériau nanocomposite.....	21
1.3. Constituants des nanocomposites.....	22

1.4. Classification des nanocomposites.....	23
1.4.1. Selon la nature de la matrice.....	23
1.4.2. Selon la morphologie des charges.....	23
1.4.3. Selon la nature chimique des charges.....	26
1.5. Exemples d'applications des matrices et des nanoparticules utilisées.....	26
1.5.1. Matrice en polystyrène (C ₈ H ₈) _n	26
1.5.2. Matrice en polyfluorure de vinylidène (PVDF).....	27
1.5.3. Nano-feuillets de graphène (Gn).....	28
1.6. Avantages des nanocomposites.....	30
1.7. Références.....	31

Chapitre 2. Analyse du Comportement Mécanique d'un Composite Élastique à Matrice Polymère en Polyéthylène Renforcé par des Fibres de Bore et de Kevlar 49

2.1. Introduction.....	35
2.2. Comportement élastique d'un composite unidirectionnel.....	36
2.2.1. Masse volumique	39
2.2.2. Module de Young dans le sens longitudinal du composite unidirectionnel.....	40
2.2.3. Module de Young transversal du composite unidirectionnel.....	43
2.3. Résultats et discussions.....	45
2.3.1. Impact de la fraction volumique et la nature de la fibre sur la masse volumique des deux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49)	46
2.3.2. Impact de la fraction volumique et de la nature de la fibre sur le module de Young longitudinal des composites : (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49).....	48
2.3.3. Impact de la fraction volumique et de la nature de la fibre sur le module transversal des deux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49)	49
2.3.4. Impact la fraction volumique et de la nature de la fibre sur la contrainte à la rupture des composites (PEHD/B) et (PEHD/ Kevlar 49)	51
2.3.5. Impact de la nature de la fibre et de sa fraction volumique sur la déformation à la rupture des deux matériaux composites (PEHD/Bore) et (PEHD/ Kevlar 49)	52
2.4. Conclusion.....	53
2.5. Références.....	54

Chapitre 3. Contribution à l'Analyse du Comportement Thermique des Composites Polymères : Cas des Composites Polyéthylènes/ Diborure de Titane (PE/TiB₂)

3.1. Introduction.....	55
-------------------------------	-----------

3.2. Modèles théoriques utilisés.....	56
3.2.1. Modèle de Hashin et Shtrikman.....	57
3.2.2. Modèle de Hasselman et Johnson.....	57
3.2.2.1. Cas de la dispersion des particules sphériques	58
3.2.2.2. Cas des particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur.....	58
3.3. Résultats et discussions.....	60
3.3.1. Cas d'une interface parfaite.....	60
3.3.1.1. Matériau composite (PEHD/ TiB ₂)	60
3.3.1.2. Matériau composite (PEDM/ TiB ₂)	62
3.3.1.3. Matériau Composite (PEBD/ TiB ₂)	65
3.3.2. Cas d'une interface imparfaite.....	67
3.3.2.1. Cas du matériau composite (PEHD/ TiB ₂)	67
3.3.2.2. Cas du matériau composite (PEDM/TiB ₂)	69
3.3.2.3. Cas du matériau composite (PEBD/ TiB ₂)	72
3.3.3. Étude comparative entre les deux interfaces.....	74
3.4. Conclusion.....	75
3.5. Références.....	77

Chapitre 4. Influence de la Morphologie des Particules Sur les Processus d'Échange de Chaleur Dans les Composites à Matrice Polymère

4.1. Introduction.....	80
4.2. Modes de transfert thermique.....	81
4.2.1. Transfert thermique par conduction.....	82
4.2.2. Transfert thermique par convection.....	83
4.2.3. Transfert thermique par rayonnement.....	84
4.3. Modélisation de la résistance thermique d'un matériau composite de forme cylindrique	84
4.4. Modélisation et simulation du transfert de chaleur.....	85
4.4.1. Objectif de la simulation.....	85
4.4.2. Outil de simulation : COMSOL Multiphysics.....	86
4.4.3. Paramètres physiques et propriétés des matériaux.....	86
4.4.4. Résultats de la simulation.....	86
4.5. Formalisme théorique.....	88
4.5.1. Flux thermique.....	89

4.5.2.	Résistance thermique.....	89
4.5.2.1.	Résistance thermique par conduction au sein du renfort	89
4.5.2.2.	Résistance thermique par conduction à travers l'interface	91
4.5.2.3.	Résistance thermique par conduction dans la matrice.....	92
4.6.	Résultats et discussions.....	91
4.6.1.	Influence du rayon radial r sur la résistance thermique par conduction au sein du renfort TiB ₂	92
4.6.2.	Influence du rayon radial r sur la résistance thermique par conduction à travers l'interface air	93
4.6.3.	Influence du rayon radial r sur la résistance thermique par conduction dans la matrice PEHD	94
4.6.4.	Influence du rayon radial r sur la résistance thermique totale du composite (PEHD/TiB ₂)	95
4.6.5.	Influence du rayon radial r sur le transfert thermique par conduction au sein du renfort TiB ₂	96
4.6.6.	Influence du rayon radial r sur le transfert thermique par conduction à travers l'interface air	98
4.6.7.	Influence du rayon radial r sur le transfert thermique par conduction dans la matrice PEHD	99
4.6.8.	Influence du rayon radial r sur le transfert thermique total du composite (PEHD/TiB ₂).....	100
4.7.	Conclusion.....	101
4.8.	Références.....	103

Chapitre 5. Comportement Électrique des Nanocomposites à Matrice Polymère : Cas des Systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

5.1.	Introduction.....	104
5.2.	Modèles analytiques.....	106
5.2.1.	Bornes de Wiener.....	107
5.2.2.	Modèle de Deng et Zheng.....	108
5.2.3.	Modèle de loi de puissance.....	109
5.3.	Matériaux utilisés.....	112
5.4.	Résultats et discussions.....	113
5.4.1.	Prédiction de la conductivité électrique par le modèle de Wiener.....	113
5.4.1.1.	Cas du nanocomposite (PS/ Gn).....	113
5.4.1.2.	Cas du nanocomposite (PVDF/ Gn).....	116
5.4.2.	Prédiction de la conductivité électrique par le modèle de Deng-Zheng.....	119

5.4.2.1.	Cas du nanocomposite (PS/Gn).....	119
5.4.2.2.	Cas du nanocomposite (PVDF/ Gn).....	121
5.4.3.	Analyse comparative des modèles de Wiener et de Deng-Zheng.....	123
5.4.4.	Prédiction de la résistivité électrique par la loi de puissance.....	124
5.4.4.1.	Cas du nanocomposite (PS/Gn).....	124
5.4.4.2.	Cas du nanocomposite (PVDF/ Gn).....	127
5.5.	Conclusion.....	130
5.6.	Références.....	133
	<i>Conclusions et perspectives.....</i>	<i>135</i>

REMERCIEMENTS

Au nom de Dieu, le Tout Miséricordieux, le Très Compatissant. Avant tout, je remercie Allah, le Tout-Puissant, de m'avoir accordé la santé, le bien-être, le courage, la volonté, la détermination et la patience nécessaires pour mener à bien ce modeste travail.

*Cette thèse a été réalisée dans le Laboratoire de Recherche sur les Macromolécules sous la direction de **Madame BENAÏMED Hayat**, Maître de Conférences à la Faculté des Sciences de l'Université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen. Qu'elle trouve ici l'expression de ma profonde gratitude pour la qualité de ses conseils, toujours pertinents et constants tout au long de ces années de travail. Je tiens également à la remercier sincèrement pour la confiance qu'elle m'a témoignée, ainsi que pour son enthousiasme, son dynamisme, son dévouement et son engagement quotidien.*

*Mes remerciements vont également à **Monsieur Khaldi Smaïn**, Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, aujourd'hui à la retraite, pour l'aide précieuse qu'il a apportée dans le cadre de ce travail.*

*Je suis très honoré de compter **Monsieur HAMOUNI Mohammed**, Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, parmi les membres du jury de cette thèse. Qu'il reçoive le témoignage de ma profonde reconnaissance pour avoir accepté d'examiner le présent travail et de présider le jury de ce mémoire.*

***Monsieur LASRI Boumediène**, Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université Moulay Tahar de Saïda, me fait l'honneur d'examiner cette thèse et en acceptant de porter un regard critique sur le présent travail. A cet égard, je l'en remercie vivement et l'assure de mon profond respect.*

*Ma respectueuse reconnaissance va également à **Monsieur DALI YUCEF Boumediène**, Professeur au sein de la Faculté des Sciences de l'Université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, pour avoir participé à ce jury et d'avoir accepté de porter un regard critique sur le présent travail.*

*Je suis également honorée de compter **Madame HADJOU DELAÏD Zakia**, Professeur au sein de la Faculté des Sciences de l'Université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, parmi les membres de ce jury. Je tiens également à lui exprimer mes remerciements les plus sincères pour avoir accepté d'examiner ce travail.*

*Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à **Monsieur BENHAMOU Sidi Mohamed**, Professeur à l'École Supérieure des Sciences Appliquées de Tlemcen, pour avoir accepté d'évaluer ce travail de thèse.*

Que toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin à la genèse de ce travail, soient vivement remerciées.

LISTE DES TABLEAUX ET DES FIGURES

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1 : Classification des composites selon la nature des constituants.....	9
Tableau 1.2 : Caractéristiques des matrices thermoplastiques et thermodurcissables.....	11
Tableau 1.3 : Comparaison de différentes formes de Polyéthylène (PE).....	16
Tableau 1.4 : Avantages et inconvénients des matériaux composites.....	20
Tableau 2.1 : Caractéristiques mécaniques de la matrice et des fibres utilisées.....	46
Tableau 3.1 : Valeurs de la conductivité thermique des matrices et du renfort utilisés.....	59
Tableau 4.1 : Paramètres utilisés dans la simulation.....	86
Tableau 5.1 : Les caractéristiques électriques des matériaux utilisés.....	113
Tableau 5.2: Les paramètres principaux des matériaux nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn) : le début de percolation Φ_p , l'épaisseur des nano-feuillets e et de l'interphase α , la longueur du tunnel L , l'exposant b , et le diamètre des nano-feuillets de graphène D	113

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Représentation schématique d'un matériau composite.....	6
Figure 1.2 : Les principaux constituants d'un matériau composite.....	6
Figure 1.3 : Les différents types de matrice.....	7
Figure 1.4 : Les différents types de renfort.....	7
Figure 1.5 : (a) Structure d'une matrice thermoplastique, (b) Structure d'une matrice thermodurcissable.....	11
Figure 1.6 : (a) Les structures géométriques des composites : fibres longues, (b) fibres courtes, (c) particules.....	13
Figure 1.7 : Schéma illustrant les notions essentielles à la compréhension des interfaces et interphases.....	14
Figure 1.8 : Influence de l'interface sur la ténacité des composites. (a) Lorsqu'une fissure atteint l'interface, (b) celle-ci agit comme une barrière et induit une déviation de la fissure.....	15
Figure 1.9 : Structure de la matrice polymère en polyéthylène (PE).....	15
Figure 1.10 : Fibres d'aramides (Kevlar 49).....	17
Figure 1.11 : Structure chimique de Kevlar 49.....	17
Figure 1.12 : Structure chimique de Bore.....	18
Figure 1.13 : Structure cristalline hexagonale du diborure de titane (TiB_2). Les atomes bleus et rouges sont respectivement des atomes de Ti et de B.....	19
Figure 1.14 : Représentation schématique d'un matériau nanocomposite.....	22
Figure 1.15 : Classification des matériaux nanocomposites en fonction de la morphologie des renforts : (a) nano-feuillets ; (b) nano-fibre ; (c) nanoparticule.....	26
Figure 1.16 : Structure chimique du polystyrène (PS).....	27
Figure 1.17 : Structure chimique du polyfluorure de vinylidène (PVDF).....	28

Figure 1.18 : Structure bidimensionnelle (2D) du graphène.....	29
Figure 1.19 : Quelques exemples d'application du graphène.....	29
Figure 2.1 : Représentation schématique d'un matériau composite unidirectionnel.....	36
Figure 2.2 : Composite unidirectionnel dans le sens longitudinal.....	40
Figure 2.3 : Composite unidirectionnel dans le sens transversal.....	43
Figure 2.4 : Variations de la masse volumique, μ , des composites (PEHD/ Bore) et (PEHD/ Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f	47
Figure 2.5 : Variations du module d'Young longitudinal, E_L , des composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f	49
Figure 2.6 : Variations du module d'Young transversal, E_T , des matériaux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f	50
Figure 2.7 : Variations de la contrainte à la rupture, ζ , des composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f	51
Figure 2.8 : Variations de la déformation à la rupture, ε , des composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f	52
Figure 3.1 : (a) Assemblage de sphères ou de cylindres dans un composite, selon le modèle de Hashin et Shtrikman pour $\lambda_2 > \lambda_1$. (b) Propagation du flux thermique dans le cas d'une ellipse	57
Figure 3.2 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB ₂), $\lambda_{eff}(PEHD/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface parfaite.....	61
Figure 3.3 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB ₂), $\lambda_{eff}(PEHD/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface parfaite.....	62
Figure 3.4 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/ TiB ₂), $\lambda_{eff}(PEDM/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface parfaite.....	63
Figure 3.5 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/TiB ₂), $\lambda_{eff}(PEDM/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface parfaite.....	64
Figure 3.6 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB ₂), $\lambda_{eff}(PEBD/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface parfaite.....	65
Figure 3.7 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB ₂), $\lambda_{eff}(PEBD/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface parfaite.....	66
Figure 3.8 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB ₂), $\lambda_{eff}(PEHD/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface imparfaite.....	68
Figure 3.9 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB ₂), $\lambda_{eff}(PEHD/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface imparfaite.....	69

Figure 3.10 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/TiB ₂), $\lambda_{eff(PEDM/TiB_2)}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface imparfaite.....	70
Figure 3.11 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/TiB ₂), $\lambda_{eff(PEDM/TiB_2)}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface imparfaite.....	71
Figure 3.12 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB ₂), $\lambda_{eff(PEBD/TiB_2)}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface imparfaite.....	72
Figure 3.13 : Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB ₂), $\lambda_{eff(PEBD/TiB_2)}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface imparfaite.....	73
Figure 4.1 : Les trois modes de transfert thermique : par conduction, par convection et par rayonnement.....	82
Figure 4.2 : Transfert thermique par conduction.....	83
Figure 4.3 : Transfert thermique par convection.....	83
Figure 4.4 : Transfert thermique par rayonnement.....	84
Figure 4.5 : (a) Composite cylindrique constitué d'une matrice, d'une interface et d'un renfort. (b) Coupe transversale d'un matériau composite.....	85
Figure 4.6 : Effet de la forme des particules sur l'échange de chaleur au sein du composite.....	87
Figure 4.7 : Impact de la forme des particules sur l'échange de chaleur au sein du composite.....	89
Figure 4.8 : Variation de la résistance thermique par conduction au sein du renfort TiB ₂ , $R_{thcond(TiB_2)}$, en fonction du rayon radial, r, pour le matériau composite (PEHD/TiB ₂).....	92
Figure 4.9 : Variation de la résistance thermique par conduction à travers l'interface air, $R_{thcond(air)}$, en fonction du rayon radial, r, pour le matériau composite (PEHD/TiB ₂).....	93
Figure 4.10 : Variation de la résistance thermique par conduction dans la matrice, $R_{thcond(PEHD)}$, en fonction du rayon radial, r, pour le matériau composite (PEHD/TiB ₂).....	95
Figure 4.11 : Variation de la résistance thermique totale, $R_{th(PEHD/TiB_2)_{totale}}$, en fonction du rayon radial, r, pour le matériau composite (PEHD/TiB ₂).....	96
Figure 4.12 : Variation du flux thermique par conduction au sein du renfort, $\phi_{thcond(TiB_2)}$, en fonction du rayon radial, r, pour le matériau composite (PEHD/TiB ₂).....	97
Figure 4.13 : Variation du flux thermique par conduction à travers l'interface air, $\phi_{thcond(air)}$, en fonction du rayon radial, r, pour le matériau composite (PEHD/ TiB ₂).....	98
Figure 4.14 : Variation du flux thermique par conduction dans la matrice, $\phi_{thcond(PEHD)}$, en fonction du rayon radial, r, pour le matériau composite (PEHD/TiB ₂).....	99
Figure 4.15 : Variation du flux thermique total, $\phi_{th(PEHD/TiB_2)_{totale}}$, en fonction du rayon radial, r, pour le matériau composite (PEHD/TiB ₂).....	101
Figure 5.1 : Variation de la conductivité électrique en fonction de la concentration de nanoparticules (Principe de seuil de percolation).....	105
Figure 5.2 : Représentation schématique des régions d'interphase et de tunnel dans un échantillon.....	111

Figure 5.3 :	Variation de la borne inférieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), $\sigma_{Winf}(PS/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn}	114
Figure 5.4 :	Variation de la borne supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), $\sigma_{Wsup}(PS/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn}	115
Figure 5.5 :	Variations des bornes inférieure et supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/ Gn), $\sigma_{Winf,sup}(PS/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn}	116
Figure 5.6 :	Variation de la borne inférieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn), $\sigma_{Winf}(PVDF/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn}	117
Figure 5.7 :	Variation de la borne supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn), $\sigma_{Wsup}(PVDF/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn}	118
Figure 5.8 :	Variations des bornes inférieure et supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn), $\sigma_{Winf,sup}(PVDF/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn}	119
Figure 5.9 :	Variation de la conductivité électrique, $\sigma_{(PS/Gn)}$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} , pour le nanocomposite (PS/Gn).....	120
Figure 5.10 :	Variation de la conductivité électrique, $\sigma_{(PS/Gn)}$, en fonction de la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène, σ_{Gn} , pour le nanocomposite (PS/Gn).....	121
Figure 5.11 :	Variation de la conductivité électrique, $\sigma_{(PVDF/Gn)}$, en fonction de la fraction volumique du des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn} , pour le nano-composite (PVDF/Gn).....	122
Figure 5.12 :	Variation de la conductivité électrique, $\sigma_{(PVDF/Gn)}$, en fonction de la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène, σ_{Gn} , pour le nanocomposite (PVDF/Gn).....	123
Figure 5.13 :	Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), ρ , en fonction de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn}	125
Figure 5.14 :	Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), ρ , en fonction de l'épaisseur des nano-feuillets de graphène, α	126
Figure 5.15 :	Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), ρ , en fonction de l'épaisseur de l'interphase, e	127
Figure 5.16 :	Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn), ρ , en fonction de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn}	128
Figure 5.17 :	Variation de la résistivité électrique du nano-composite (PVDF/Gn), ρ , en fonction de l'épaisseur des nano-feuillets de graphène, α	129
Figure 5.18 :	Variation de la résistivité électrique du matériau nano-composite (PVDF/Gn), ρ , en fonction de l'épaisseur de l'interphase, e	130

TABLE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS

INDICES INFÉRIEURS

- 1 :** Direction Longitudinale.
2 : Direction Transversale.
3 : Direction Transversale.
c : Composite.
cond: Conductif (tive).
eff : Effective.
f : Fibre.
Gn : Graphène (Gn : notation utilisée dans l'ensemble du manuscrit).
i : Interphase.
L : Direction Longitudinal.
LT : Plan Formé par l'Axe Longitudinal et l'Axe Transversal.
m : Matrice.
n : Degré de Polymérisation.
N : Réseau Conducteur.
p : Seuil de Percolation.
r : Renfort.
T : Direction Transversal.
th: Thermique.
Total(e) : Total(e).
Winf : Borne Inférieure de Wiener.
Wsup : Borne Supérieure de Wiener.

INDICES SUPÉRIEURS

- ° :** Degré.
b : Exposant Critique.

LETTRES LATINES MINUSCULES

- a :** Rayon des Sphères.
d : Dimension du Système.
dT: Gradient de Température.
e : Épaisseur de l'Interphase.
f : Pourcentage des Nano-feuillets Contribuant aux Réseaux Conducteurs.
hc: Conductance de l'Interface.

m : Mètre.
r : Rayon Radial.
t : Temps.

LETTRES LATINES MAJUSCULES

A : Surface d'Échange Thermique.
°C : Unité de la Température.
D : Diamètre.
E : Module Élastique.
F : Force.
G : Module de Cisaillement.
K : Kelvin.
K : Matrice de Rigidité.
L : Longueur du cylindre, Longueur du Tunnel.
MPa : Méga Pascal.
Q : Quantité d'Énergie Thermique.
R, R_c : Résistance Thermique.
S : Section, Siemens (Unité).
T : Température.
V : Volume.
W : Watt.

LETTRES GRECQUES MINUSCULES

α : Épaisseur des Nano-feuillets de Graphène.
 δ : Épaisseur de la couche d'air interfaciale.
 ε : Déformation.
 ε : Tenseur des Déformations.
 ϕ : Flux Thermique.
 λ : Conductivité Thermique.
 μ : Masse Volumique, Micro (unité).
 ν : Coefficient de Poisson.
 θ : Angle.
 ρ : Résistivité Électrique.
 σ : Conductivité Électrique.

LETTRES GRECQUES MAJUSCULES

- Φ : Fraction Volumique.
 ζ : Contrainte.
 $\underline{\zeta}$: Tenseur des Contraintes.
 Ω : Ohm.

SYMBOLES

- Δ : Différence Entre Deux Quantités.

ABRÉVIATIONS

- ADN** : Acide Désoxyribonucléique (DNA : Deoxyribonucleic Acid).
Al₂O₃ : Oxyde d'Aluminium (Aluminum Oxide).
B : Bore.
CMC : Composites à Matrice Céramique.
CMM : Composites à Matrice Métallique.
CMO : Composites à Matrice Organique.
CVD : Dépôt Chimique en Phase Vapeur.
DVD : Disque Vidéo Numérique (Digital Video Disc).
Fig. : Figure.
Gn : Graphène (abréviation adoptée pour l'ensemble de la thèse).
GPa : Giga Pascal.
HDL : Hydroxydes Doubles Lamellaires.
LED : Diode Électroluminescente (Light Emitting Diode).
PE : Polyéthylène.
PEBD : Polyéthylène de Basse Densité (Low-Density Polyethylene : LDPE)
PEHD : Polyéthylène de Haute Densité (High-Density Polyethylene : HDPE).
PEDM : Polyéthylène de Densité Moyenne (Medium-Density Polyethylene : MDPE).
TiB₂ : Diborure de Titane.
PS : Polystyrène.
PVDF : Polyfluorure de Vinylidène (Polyvinylidene Fluoride).
SiC : Carbure de Silicium (Silicon Carbide).
TD : Thermodurcissable.
TP : Thermoplastiques.
ZnO : Oxyde de Zinc (Zinc Oxide).

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Introduction générale

L'étude des matériaux composites à matrice polymère constitue aujourd'hui un domaine de recherche en pleine expansion, motivé par le besoin croissant de développer des matériaux innovants répondant aux exigences technologiques et industrielles avancées. L'objectif fondamental de la conception de composites réside dans la synergie créée par l'association de deux ou plusieurs constituants de natures distinctes, dont la combinaison permet d'obtenir des propriétés globales supérieures à celles de chacun des composants pris individuellement. Recherchés pour leur légèreté, leur robustesse et leur aptitude à être façonnés selon des procédés variés, les composites à matrice polymère présentent ainsi des atouts notables sur les plans mécanique, thermique et économique. Ces qualités en font des candidats privilégiés dans des domaines d'application variés tels que l'aéronautique, l'automobile, la construction, l'énergie, le biomédical ou encore l'électronique [1].

Toutefois, malgré leurs performances mécaniques et leur bon comportement thermique, les composites conventionnels souffrent encore de limitations fonctionnelles, notamment en ce qui concerne la conductivité thermique, la conductivité électrique, ou encore la capacité de dissipation des champs électromagnétiques. Pour dépasser ces contraintes, les recherches se sont orientées vers une nouvelle génération de matériaux : les nanocomposites polymères, caractérisés par l'incorporation de renforts à l'échelle nanométrique. Grâce à leur grande surface spécifique, les nano-charges permettent d'induire des améliorations significatives des propriétés fonctionnelles, même à faibles teneurs, contrairement aux charges traditionnelles micrométriques. Ainsi, l'ajout de nanomatériaux tels que les nanotubes de carbone, les argiles lamellaires, la silice, le graphène ou encore le diborure de titane (TiB_2) permet d'optimiser respectivement les propriétés mécaniques, barrières, thermiques et électriques des matrices polymères [2].

Dans cette optique, les nanocomposites apparaissent comme une solution particulièrement prometteuse face aux exigences croissantes des secteurs industriels de pointe, notamment dans l'électronique flexible ou l'aéronautique. Toutefois, la performance de ces matériaux repose sur une compréhension fine de paramètres structuraux essentiels : la fraction volumique des renforts, leur géométrie, leur distribution, l'épaisseur de l'interface, ainsi que le seuil de percolation électrique ou thermique, qui peut être atteint à partir de faibles concentrations (1 à 5 % en volume) [3]. L'analyse rigoureuse de ces facteurs représente un axe de recherche fondamental dans le développement de matériaux à haute valeur ajoutée, capables de combiner légèreté, multifonctionnalité et adaptabilité aux contraintes environnementales et technologiques.

Introduction générale

C'est dans ce cadre scientifique et applicatif que s'inscrit la présente thèse. Celle-ci vise à étudier et à modéliser les propriétés mécaniques, thermiques et électriques des composites à matrice polymère, en mettant particulièrement l'accent sur l'effet des renforts, leur morphologie, leur organisation interne ainsi que les interactions interfaciales. L'objectif est double ; d'une part, approfondir la compréhension des mécanismes de transfert à l'échelle micro- et nanométrique, et d'autre part, proposer des modèles prédictifs permettant de guider la conception rationnelle de matériaux composites multifonctionnels, adaptés aux besoins actuels et futurs de l'industrie.

Cette thèse s'ouvre sur une introduction générale visant à contextualiser l'intérêt croissant porté à l'étude des matériaux composites à matrice polymère, tout en exposant les motivations scientifiques et technologiques ayant conduit au présent travail. La première partie, à caractère bibliographique, est consacrée à l'exploration des composites à matrice polymère à travers une présentation de leurs fondements conceptuels, de leurs principales classifications, ainsi que des constituants fondamentaux qui les composent. Une attention particulière est accordée aux matrices polymères, aux renforts, aux interfaces matrice-renfort, ainsi qu'aux polymères les plus utilisés dans les applications industrielles. Dans le prolongement de cette analyse, un accent spécifique est mis sur les nanocomposites renforcés par du graphène, notamment ceux intégrant une matrice de polystyrène (PS) ou de polyfluorure de vinylidène (PVDF). Ces matériaux présentent en effet des propriétés mécaniques et électriques remarquables, qui en font des candidats de choix pour des applications avancées dans le domaine des nanotechnologies.

Le deuxième chapitre de ce travail est consacré à la modélisation des propriétés mécaniques de composites unidirectionnels de type (PEHD/Kevlar 49) et (PEHD/Bore). L'objectif est d'évaluer l'influence de la nature du renfort, de sa taille et de sa fraction volumique sur des paramètres mécaniques clés, tels que le module de Young, la contrainte maximale et la déformation à la rupture.

Les troisième et quatrième chapitres s'intéressent à l'étude de la conductivité thermique des composites à matrice polymère, en particulier ceux constitués de polyéthylène haute densité (PEHD) renforcé par du diborure de titane (TiB_2). L'analyse s'appuie sur des modèles analytiques, notamment ceux de Hashin-Shtrikman et de Hasselman-Johnson, afin de prendre en compte l'influence des interfaces parfaites et imparfaites ainsi que la géométrie des particules de renfort. Une investigation approfondie du transfert thermique global a été menée,

Introduction générale

englobant l'analyse des flux de chaleur et des résistances thermiques, dans le but d'approfondir la compréhension du comportement thermique de ces matériaux dans des conditions extrêmes.

Le cinquième chapitre est consacré à l'étude de la conductivité électrique des nanocomposites à matrice polymère, en particulier les systèmes à base de polystyrène (PS/Gn) et de polyfluorure de vinylidène (PVDF/Gn). L'analyse porte sur l'influence de plusieurs paramètres clés, notamment la fraction volumique, la géométrie, la dispersion des charges conductrices ainsi que les propriétés intrinsèques des matrices polymères. Pour ce faire, les modèles analytiques de Wiener et de Deng-Zheng ont été mobilisés afin de quantifier les effets croisés de ces facteurs sur la conductivité électrique globale des matériaux étudiés. Par ailleurs, un modèle fondé sur la théorie de la percolation a été élaboré selon une loi de puissance, permettant de prédire la conductivité électrique des nanocomposites. Ce modèle a été étendu à l'évaluation de la résistivité électrique, en intégrant l'influence de paramètres structuraux tels que l'épaisseur et la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, ainsi que l'épaisseur de l'interphase.

La dernière section de ce travail est dédiée à l'analyse critique des résultats obtenus, à la présentation des conclusions qui en découlent, ainsi qu'à la proposition de perspectives de recherche futures.

Introduction générale

Références

- [1] A. Bodin, “Nanocomposites polymères thermoconducteurs, électriquement isolants et imprimables en 3D pour des applications de dissipation thermique” *Thèse de Doctorat*, Université de Grenoble, France, 2023.
- [2] A. Salinier, “Préparation d'un composite hybride par co-malaxeur : influence des paramètres de mise en œuvre sur les propriétés” *Thèse de Doctorat*, École doctorale sciences exactes et leurs applications, Pau, Pyrénées Atlantiques, France, 2014.
- [3] S. Barrau “Nanocomposites à matrice polymère, structure et propriétés fonctionnelles” *Thèse de Doctorat*, Université de Lille, France, 2021.

CHAPITRE 1

Étude Bibliographique

A. Matériaux composites

1.1. Introduction

Dans le contexte des innovations majeures en ingénierie et en industrie, les matériaux composites occupent une place centrale. L'alliance entre légèreté, rigidité et résistance, qui caractérise ces matériaux, en fait une solution particulièrement adaptée à diverses applications. Les avancées dans le domaine de la science des matériaux ont conduit à l'émergence d'une nouvelle génération de matériaux composites : les nanocomposites. Ces derniers se caractérisent par l'incorporation de nanoparticules ou de nanostructures au cœur des matrices polymères, métalliques ou céramiques, induisant ainsi une optimisation notable de leurs propriétés par rapport aux composites conventionnels. Ce chapitre a pour objectif de décrire les concepts fondamentaux essentiels à la compréhension des propriétés de ces matériaux. Tous ces éléments de base sont présentés pour faciliter l'appréhension des différents chapitres que comprend la présente thèse.

La première section de cette étude est dédiée à l'exploration des composites à matrice polymère, en mettant en lumière leurs fondements conceptuels ainsi que leurs principales classifications. Une attention particulière sera portée aux éléments constitutifs essentiels de ces matériaux, notamment les matrices, l'interface matrice-renfort, ainsi que les polymères les plus couramment employés, tels que le polyéthylène de haute densité (PEHD), le polyéthylène de basse densité (PEBD) et le polyéthylène de densité moyenne (PEDM). Par ailleurs, une analyse approfondie sera consacrée aux différents types de fibres et de renforts utilisés dans le présent travail, à savoir les fibres d'aramide (Kevlar 49), les fibres de Bore (B) et les renforts en diborure de titane (TiB_2). Enfin, les avantages, les inconvénients, les propriétés fonctionnelles et les principales applications industrielles des matériaux composites feront l'objet d'un examen détaillé.

1.2. Définition d'un matériau composite

Un matériau composite est le résultat de l'association de plusieurs matériaux élémentaires aux natures différentes et non miscibles. Lorsqu'ils sont combinés, ces matériaux forment un ensemble dont les propriétés mécaniques, thermiques ou physiques surpassent celles de chacun des composants pris individuellement [1]. Le renfort, souvent sous forme de fibres, joue un rôle essentiel dans la résistance mécanique et la rigidité de la structure, tout en permettant de supporter les charges appliquées et de limiter les contraintes thermiques. La matrice, quant à elle, assure la cohésion du matériau, protège le renfort contre les agressions extérieures et assure

Chapitre 1. Étude bibliographique

le transfert des charges grâce à l'interface fibre-matrice. Contrairement aux matériaux multiphasiques, où plusieurs phases apparaissent naturellement à la suite de réactions chimiques ou de transformations physiques, les matériaux composites sont obtenus par l'assemblage intentionnel de phases distinctes (Figure 1.1).

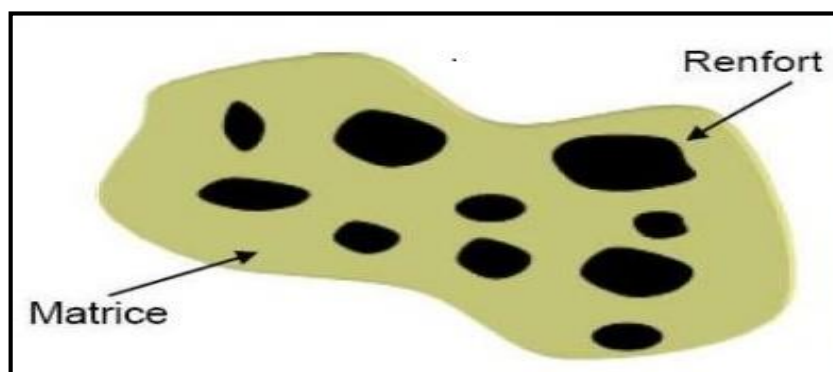


Fig. 1.1. Représentation schématique d'un matériau composite [2].

1.3. Constituants des matériaux composites

Dans le domaine des matériaux composites, il est communément admis que leur composition repose essentiellement sur quatre constituants principaux : la matrice, les renforts, les additifs et les interfaces (Figure 1.2). Les propriétés physico-chimiques de ces matériaux dépendent étroitement de la nature intrinsèque et de la proportion relative de chacun de ces éléments [1].

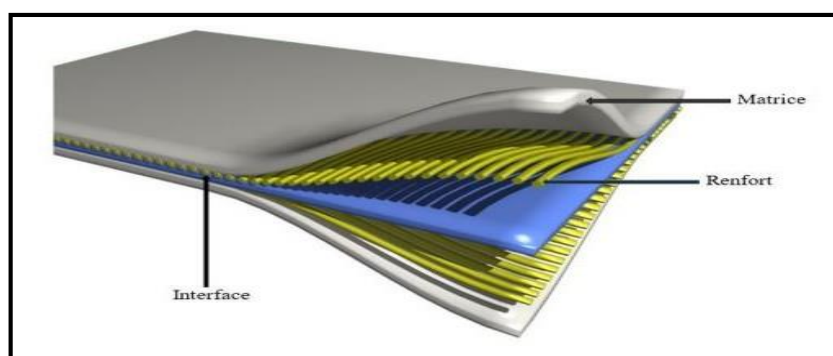


Fig. 1.2. Les principaux constituants d'un matériau composite [3].

1.3.1. Matrice

La matrice joue un rôle fondamental dans les matériaux composites. Elle assure la cohésion des fibres de renfort, facilite la transmission et la répartition des charges mécaniques appliquées, tout en contribuant à la mise en forme de la pièce et à la stabilité dimensionnelle de l'ensemble. La figure 1.3 montre les principaux types de matrices utilisées [1], [4].

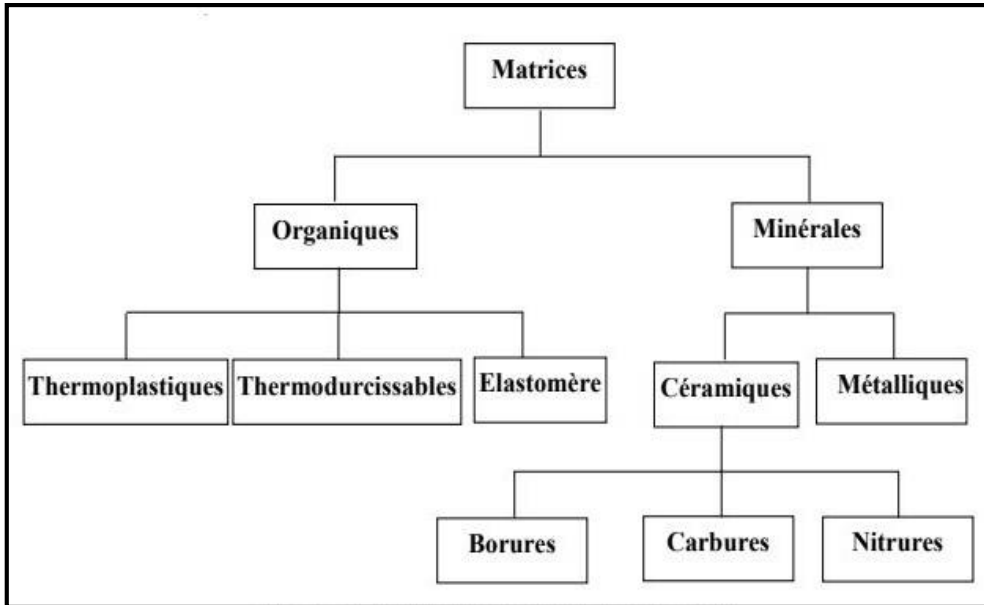


Fig. 1.3. Les différents types de matrice [1], [4].

1.3.2. Renfort

Dans le domaine des matériaux composites, le renfort est défini comme l'armature ou le squelette du matériau, conférant ainsi des propriétés mécaniques spécifiques, telles que la rigidité, la résistance à la rupture et la dureté. En outre, le renfort permet d'optimiser diverses propriétés physiques, notamment le comportement thermique, la résistance aux températures élevées, la tenue au feu, la résistance à l'abrasion et les propriétés électriques. Les critères de sélection des renforts incluent des propriétés mécaniques élevées, une masse volumique réduite, une compatibilité optimale avec les résines, une facilité de mise en œuvre, et un coût abordable. La figure suivante illustre les types de renforts les plus couramment utilisés [1], [4].

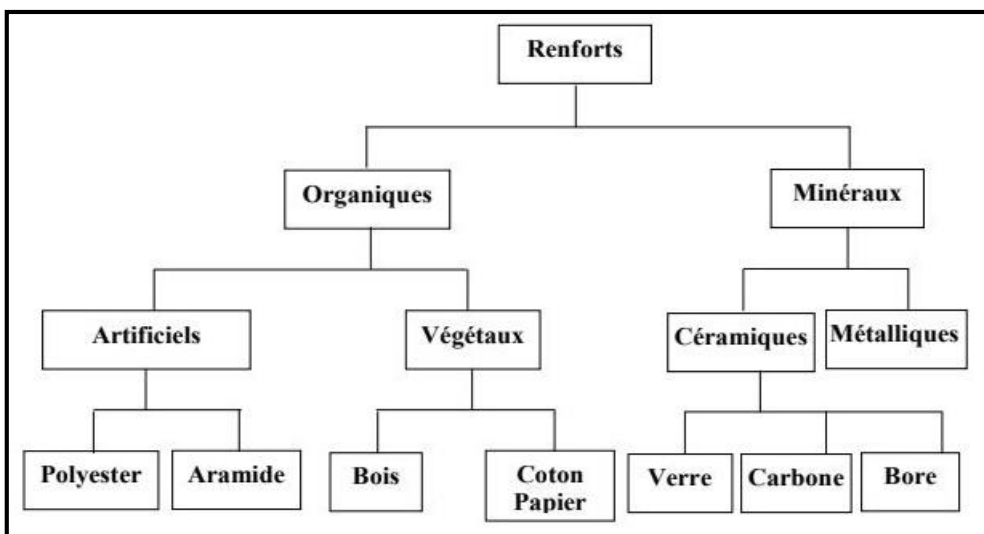


Fig. 1.4. Les différents types de renfort [1], [4].

Chapitre 1. Étude bibliographique

1.4. Caractéristiques des matériaux composites

Les propriétés des matériaux composites dépendent d'un ensemble complexe de facteurs, incluant la nature, la quantité, la géométrie et la distribution des constituants (matrice et renfort), ainsi que de leurs interactions. Un facteur clé influençant ces propriétés est également la qualité de l'interface entre la matrice et le renfort.

Les pièces élaborées à partir de matériaux composites présentent un ensemble de caractéristiques distinctives, notamment :

- une faible masse volumique,
- une excellente résistance à la fatigue, qui prolonge significativement leur durée de vie,
- une très bonne résistance à la corrosion,
- l'absence de plasticité : leur limite élastique coïncide avec la limite de rupture,
- une résistance limitée aux chocs,
- une forte anisotropie.

Ils montrent également une bonne stabilité chimique, résistant à de nombreux produits usuels comme les solvants, les huiles, les peintures et les hydrocarbures. En revanche, leur comportement face au vieillissement sous humidité ou à température élevée peut représenter une contrainte selon l'application [5].

La particularité des composites réside dans la synergie entre leurs constituants, qui confère à l'ensemble des propriétés que les éléments pris individuellement ne possèdent pas. Cette combinaison de propriétés rend les composites particulièrement attrayants pour une multitude d'applications dans des domaines variés.

Ces dernières années, les matériaux composites ont connu un développement considérable, en particulier ceux à matrice polymère (souvent désignés sous le terme de "plastiques"). Leur succès s'explique par plusieurs avantages : facilité de mise en œuvre, faible coût de production, bonne résistance à l'usure, et immunité à la corrosion. Ces atouts positionnent les composites à matrice polymère comme des matériaux de choix pour les applications industrielles et technologiques modernes.

1.5. Classification des matériaux composites

Le choix des renforts dépend étroitement de la nature de la matrice et de la famille de composites considérée. Les composites à matrice organique occupent une place prépondérante

Chapitre 1. Étude bibliographique

dans les applications modernes en raison de leur polyvalence et de leurs performances spécifiques. Ils se subdivisent généralement en deux grandes catégories :

- ❖ **Les composites à grande diffusion**, caractérisés par un coût de production relativement faible, sont largement utilisés pour la fabrication de pièces variées dans des secteurs industriels diversifiés [6].
- ❖ **Les composites à haute performance**, en revanche, sont conçus pour répondre aux exigences rigoureuses de domaines tels que l'aéronautique, la navigation, le sport ou les loisirs de haute technologie. Leur production reste toutefois plus onéreuse [6].

1.5.1. Classification suivant la nature des constituants

Dans le cadre de cette étude, les matériaux composites sont classés en fonction de la nature de leur matrice, distinguant ainsi trois grandes catégories : les composites à matrice organique, métallique et céramique. L'analyse porte également sur les types de renforts associés à chacune de ces matrices. Certaines combinaisons matrice-renfort sont déjà largement exploitées dans l'industrie en raison de leurs performances éprouvées, tandis que d'autres restent à l'état de développement ou d'optimisation. Parmi les principales configurations rencontrées, celles présentées dans le tableau 1.1 méritent une attention particulière.

Type de composite	Nature de la matrice	Types de renforts courants	Exemples d'applications
Composites à matrice organique (CMO)	Polymères thermoplastiques ou thermodurcissables	Fibres de verre, de carbone, d'aramide ; charges minérales ; particules céramiques (TiB ₂ , SiC, Al ₂ O ₃ , etc.)	Aéronautique, automobile, équipements sportifs, biomédical etc.
Composites à matrice métallique (CMM)	Aluminium, magnésium, titane, cuivre, etc.	Fibres de bore, de carbone ; céramiques (SiC, Al ₂ O ₃) ; nanoparticules métalliques	Aéronautique, spatial, composants automobiles de haute performance
Composites à matrice céramique (CMC)	Alumine, zircon, carbure de silicium, nitrures	Fibres céramiques (SiC, Al ₂ O ₃), fibres de carbone	Turbines, échangeurs de chaleur, composants pour réacteurs nucléaires

Tableau 1.1. Classification des composites selon la nature des constituants [6].

Chapitre 1. Étude bibliographique

1.5.2. Matrices organiques

Les matrices organiques occupent une place prépondérante dans la fabrication des matériaux composites, en raison de leurs propriétés avantageuses telles que la résistance à la corrosion et aux agressions chimiques. Elles se distinguent également par leur faible coût et leur facilité de mise en œuvre. Sur le plan chimique, la matière organique fait référence aux polymères, constitués d'enchaînements de monomères. Ces polymères peuvent adopter des architectures très diverses : linéaires, ramifiées ou réticulées. Le plus souvent amorphes, ils peuvent toutefois présenter un certain degré de cristallinité [7], conférant alors au matériau de bonnes propriétés mécaniques ainsi qu'une faible masse volumique [8].

On distingue généralement trois grandes familles de polymères [1] :

- ❖ **Les résines thermodurcissables** : sont couramment utilisées comme matrices dans les matériaux composites destinés à des applications structurelles exigeantes. Elles forment des réseaux tridimensionnels stables par l'établissement de liaisons chimiques fortes, notamment covalentes (Figure 1.5 (b)). Bien qu'elles soient difficilement recyclables en raison de leur transformation irréversible sous l'effet de la chaleur ou de réactifs chimiques, elles offrent d'excellentes propriétés mécaniques et thermomécaniques, généralement supérieures à celles des thermoplastiques [1], [7].

- ❖ **Les résines thermoplastiques** : sont largement utilisées comme matrices dans les matériaux composites en raison de leur recyclabilité, de leur faible coût et de leur facilité de mise en œuvre. Leur structure, composée de chaînes polymériques reliées par des liaisons faibles, comme les liaisons hydrogène ou de Van der Waals (Figure 1.5(a)), permet une transformation réversible sous l'effet de la chaleur, ainsi qu'une certaine solubilité dans des solvants spécifiques. Bien que leurs propriétés mécaniques soient généralement inférieures à celles des résines thermodurcissables, certaines thermoplastiques hautes performances, offrent une résistance mécanique appréciable combinée à une faible masse volumique [1], [7]. Le tableau 1.2 présente une synthèse comparative des principales propriétés de ces deux types de matrices, mettant en évidence leurs atouts et leurs limites dans le contexte des applications composites.

Chapitre 1. Étude bibliographique

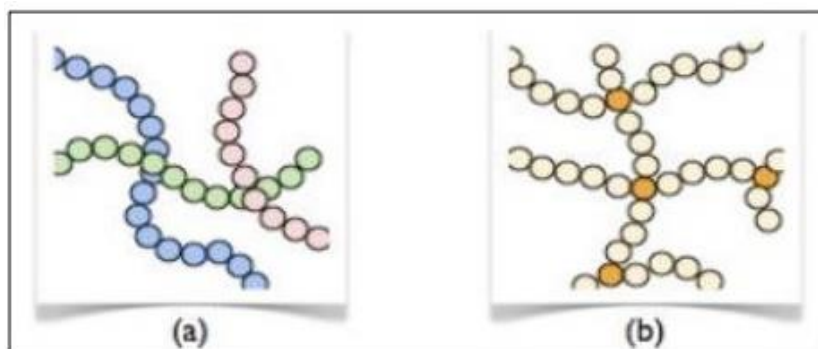


Fig. 1.5. (a) Structure d'une matrice thermoplastique, (b) Structure d'une matrice thermodurcissable [9].

<i>Matrice</i>	<i>Thermoplastiques TP</i>	<i>Thermodurcissable TD</i>
Etat de base	Solide prêt à l'emploi	Liquide visqueux à polymériser
Stockage	Illimité	Réduit
Mouillabilité renfort	Difficile	Aisée
Moulage	Chauffage Refroidissement	Chauffage continu
Cycle	Court	Longue
Tenue au Choc	Assez bonne	Limitée
Tenue Thermique	Réduite	Bonne

Tableau 1.2. Caractéristiques des matrices thermoplastiques et thermodurcissables [10].

❖ **Les élastomères** : constituent la troisième grande famille de polymères, caractérisés par leur élasticité élevée et leur capacité à reprendre leur forme initiale après déformation. Cette propriété résulte de leur structure macromoléculaire faiblement réticulée, qui leur confère une grande flexibilité à température ambiante. Bien qu'ils présentent généralement des propriétés mécaniques inférieures à celles des thermoplastiques et des thermodurcissables, les élastomères sont essentiels dans les applications où la résilience, l'amortissement des vibrations et la déformabilité sont requises. Leur usage dans les matériaux composites est plus limité pour les applications structurales, mais ils peuvent

Chapitre 1. Étude bibliographique

être employés comme matrice dans des composites souples ou fonctionnels, notamment dans les domaines du biomédical, de l'automobile ou de l'électronique souple. Leur compatibilité avec certaines charges ou renforts, bien qu'ayant des contraintes spécifiques d'adhésion interfaciale, permet le développement de composites flexibles à propriétés adaptatives.

1.5.3. Classification selon la forme des constituants

Les matériaux composites peuvent être classés en deux grandes catégories en fonction de la forme des éléments de renfort : les composites à particules et les composites à fibres [6].

1.5.3.1. Composites à fibres

Les composites à fibres sont des matériaux dans lesquels la phase de renfort est introduite sous forme fibreuse au sein d'une matrice. Selon la géométrie des fibres de renfort, ces composites peuvent être classés en deux catégories principales : les composites à fibres continues et les composites à fibres discontinues (Figure 1.6 (a) et (b)) [6]. L'orientation, la répartition et l'agencement des fibres jouent un rôle déterminant dans les propriétés mécaniques du composite, offrant une grande flexibilité dans la conception des matériaux. Cette adaptabilité permet de développer des composites aux performances très variées. Le concepteur peut ainsi ajuster les comportements mécaniques et physiques du matériau en agissant sur plusieurs paramètres clés, à savoir la nature des constituants, leur proportion respective, ainsi que l'orientation des fibres [6].

1.5.3.2. Composites à particules

Les composites à particules constituent une catégorie de matériaux composites dans laquelle le renfort est exclusivement constitué de particules, par opposition aux fibres (Figure 1.6 (c)). Ces particules, dont la taille et la forme peuvent varier, sont généralement incorporées à la matrice pour améliorer certaines propriétés telles que la rigidité, la résistance à l'usure, à l'abrasion, aux températures élevées, ou encore pour limiter le retrait dimensionnel [6]. Elles sont également utilisées dans un objectif économique, permettant de réduire le coût de production tout en conservant les performances globales du matériau.

Le choix de la matrice et de la nature des particules dépend des propriétés finales souhaitées. Par exemple, l'ajout de plomb dans les alliages de cuivre vise à faciliter l'usinage, tandis que l'incorporation de particules métalliques fragiles comme le tungstène ou le chrome dans une

Chapitre 1. Étude bibliographique

matrice métallique ductile permet d'améliorer le comportement à haute température sans compromettre la ductilité à température ambiante [6].

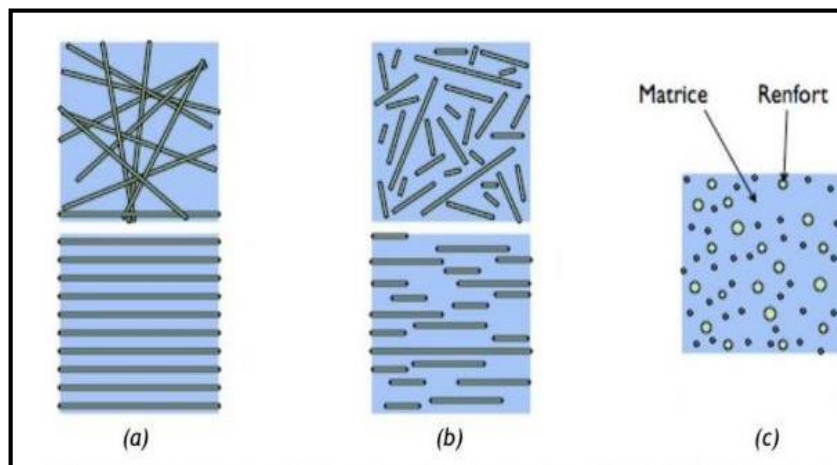


Fig. 1.6. Les structures géométriques des composites : (a) fibres longues, (b) fibres courtes, (c) particules [6].

1.6. Interface matrice-renfort

Dans le cadre de cette recherche, une attention particulière a été portée à l'interface matrice-renfort et à son influence sur les performances mécaniques des matériaux composites. Les résultats obtenus montrent que les propriétés mécaniques globales ne dépendent pas uniquement des caractéristiques intrinsèques des constituants, mais également de la qualité de la zone interfaciale, qui joue un rôle déterminant dans la transmission des contraintes vers le renfort [11], comme illustré sur la figure 1.7.

L'interface associée aux renforts préalablement traités par un agent d'encollage se compose généralement de deux éléments : la surface de contact fibre/matrice et une fine couche de résine modifiée chimiquement par l'agent d'encollage [12]. Cette zone interfaciale possède des propriétés physico-chimiques et mécaniques distinctes de celles de la fibre et de la matrice, ce qui en fait une entité structurale à part entière dans le composite [13].

L'étude expérimentale de cette interface demeure complexe, car l'accès direct à ses caractéristiques est limité. La majorité des données disponibles sont obtenues à partir de composites modèles ou par le biais de modélisations mécaniques appliquées à des structures unidirectionnelles. Ces approches reposent généralement sur l'hypothèse d'une interface sans épaisseur, permettant ainsi une analyse micromécanique simplifiée du comportement du composite [13].

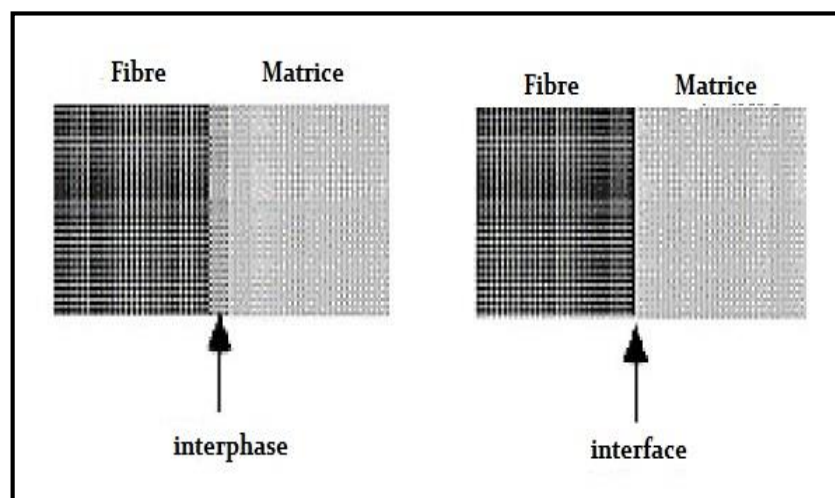


Fig. 1.7. Schéma illustrant les notions essentielles à la compréhension des interfaces et interphases [14].

1.7. Rôle de l'interface

Les matériaux composites, de par leur nature hétérogène, sont constitués d'interfaces, définies comme les zones de contact entre la matrice et le renfort. Lorsque le composite est intact et que l'adhésion entre les constituants est optimale, l'interface ne joue pas de rôle structurel majeur. Toutefois, cette situation évolue dès lors que le matériau subit des dégradations mécaniques, telles que celles induites par une surcharge, la fatigue ou d'autres sollicitations répétées.

Dans de telles conditions, l'interface acquiert une fonction essentielle en influençant le mécanisme de rupture. En effet, il a été observé que les interfaces sont capables de dévier la propagation des fissures. Lorsqu'une fissure initiée dans la matrice atteint l'interface (voir Figure 1.8 (a)), elle ne la traverse généralement pas. Ainsi, les renforts restent intacts. La fissure modifie alors sa trajectoire et suit l'interface (Figure 1.8 (b)), traduisant un comportement de décohésion progressive plutôt qu'une fracture brutale.

Ce mécanisme de dissipation d'énergie confère à l'interface un rôle analogue à celui d'un fusible, limitant la propagation de la rupture dans le matériau. Par conséquent, les composites présentent une ductilité et une ténacité accrues par rapport à leurs constituants pris individuellement, ce qui améliore significativement leur résistance globale à la rupture [15].

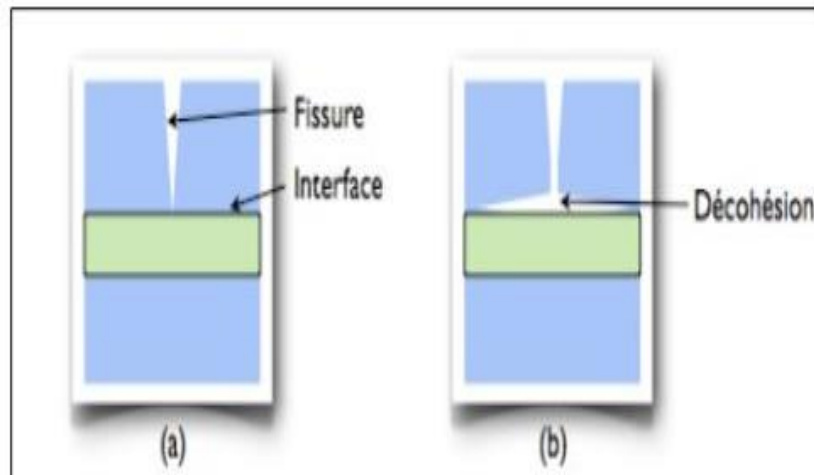


Fig. 1.8. Influence de l'interface sur la ténacité des composites. (a) Lorsqu'une fissure atteint l'interface, (b) celle-ci agit comme une barrière et induit une déviation de la fissure. Ce mécanisme conduit à une décohésion progressive entre les constituants, remplaçant ainsi une rupture brutale par un endommagement graduel du matériau [15].

1.8. Exemples d'applications des matrices et des renforts utilisés

1.8.1. Polyéthylène (PE)

Le polyéthylène (PE) est un polymère thermoplastique couramment utilisé comme matrice dans les matériaux composites à base de polymères, en raison de ses excellentes propriétés mécaniques, de sa grande inertie chimique et de sa facilité de mise en forme. Il assure la cohésion de la structure composite en jouant le rôle de phase continue, liant les renforts (fibres ou particules) tout en permettant un transfert efficace des contraintes mécaniques [8], [16]. Le polyéthylène se décline en plusieurs catégories, différenciées principalement par leur densité, un facteur qui influence de manière significative ses propriétés physico-chimiques ainsi que ses domaines d'application.

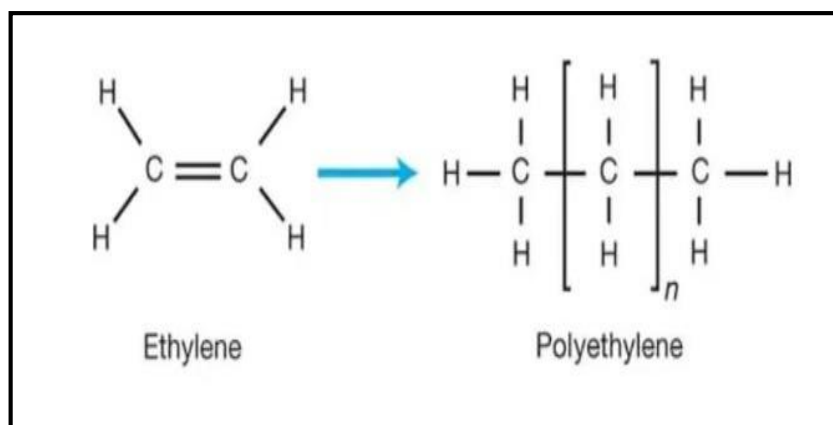


Fig. 1.9. Structure de la matrice polymère en polyéthylène (PE) [17].

Chapitre 1. Étude bibliographique

Le polyéthylène (PE), en tant que polymère thermoplastique, se décline en plusieurs variantes selon sa structure moléculaire, sa densité et son degré de cristallinité. Ces différences influencent directement ses propriétés mécaniques, thermiques et ses domaines d'application. Le tableau suivant présente une synthèse comparative des principaux types de polyéthylène.

Type de PE	Structure moléculaire	Densité (g/cm ³)	Cristallinité	Propriétés principales	Applications courantes
PEHD (Polyéthylène de haute densité)	Chaînes linéaires avec peu de ramifications	0,941-0,965	Élevée	Résistance élevée, rigidité, résistance aux chocs, bonne résistance chimique	Conteneurs rigides, tuyaux, bouteilles
PEDM (Polyéthylène de densité moyenne)	Chaînes modérément ramifiées	0,926-0,940	Modérée	Bon compromis entre rigidité et flexibilité, bonne résistance aux chocs	Conduites de gaz, films d'emballage, pièces moulées
PEBD (Polyéthylène de basse densité)	Chaînes très ramifiées	0,915-0,925	Faible	Grande flexibilité, faible résistance à la traction, bonne résistance aux chocs	Sacs plastiques, films d'emballage, revêtements souples

Tableau 1.3. Comparaison de différentes formes de Polyéthylène (PE) [8], [16], [18-22].

Parmi ces variantes, le polyéthylène haute densité (PEHD) se distingue par sa structure quasi-linéaire, sa cristallinité élevée et ses bonnes performances mécaniques, ce qui en fait un candidat privilégié comme matrice dans les composites à base de polymères. En revanche, des types comme le PEBD ou le PEDM, plus flexibles, sont davantage utilisés dans les applications nécessitant de la souplesse ou une transformation facile (films, gaines).

1.8.2. Fibres d'aramides (Kevlar)

Les fibres d'aramide, dont la plus connue est le Kevlar®, sont des polymères aromatiques polyamides caractérisés par leur structure moléculaire rigide et orientée (Figure 1.10). Elles sont obtenues par polymérisation d'unités aromatiques, ce qui confère au matériau une excellente stabilité thermique et une très haute résistance mécanique, notamment à la traction.

Chapitre 1. Étude bibliographique

Le Kevlar présente un rapport résistance/poids exceptionnel, ce qui en fait un choix privilégié dans les applications nécessitant à la fois légèreté et robustesse, telles que les gilets pare-balles, les composants aéronautiques, les casques de protection ou encore certains équipements sportifs [23].

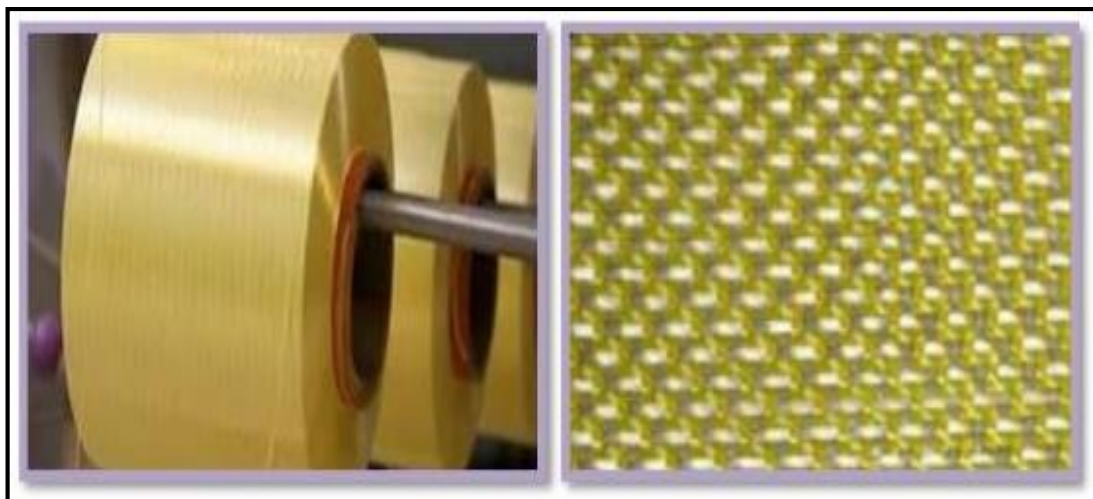


Fig. 1.10. Fibres d'aramides (Kevlar 49) [1].

D'un point de vue chimique, les fibres d'aramide possèdent une structure en chaînes linéaires fortement cristallines, orientées dans la direction de la fibre (Figure 1.11). Cette organisation moléculaire est responsable de leur grande ténacité, ainsi que de leur résistance aux chocs, à l'abrasion et à la chaleur. Toutefois, leur sensibilité à l'humidité et aux rayons ultraviolets peut limiter leur durabilité dans certaines conditions environnementales, ce qui impose des traitements ou des revêtements de protection spécifiques [23].

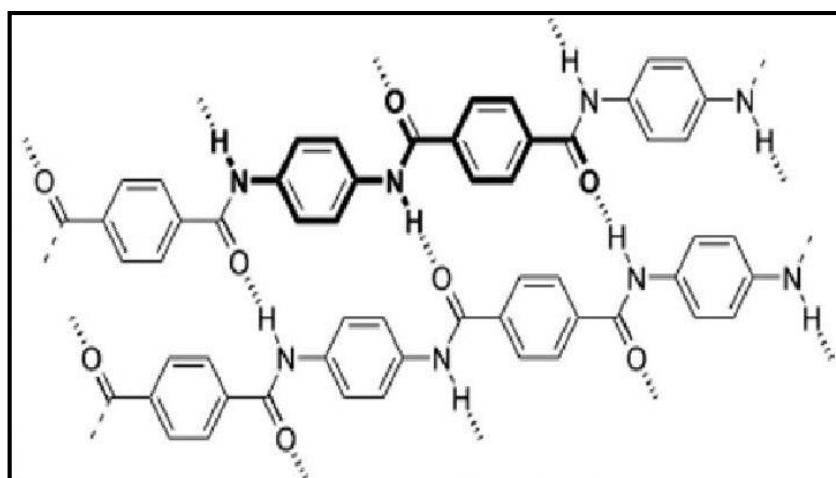


Fig. 1.11. Structure chimique de Kevlar 49 [24].

Chapitre 1. Étude bibliographique

En tant que renfort dans les matériaux composites, les fibres d'aramide permettent d'améliorer significativement les performances mécaniques globales, en particulier en termes de résistance à la fissuration et à la rupture, tout en maintenant une faible masse volumique [23].

1.8.3. Fibres de Bore

Les fibres de bore sont des matériaux de renforcement à haute performance, principalement utilisés dans les composites à matrice polymère ou métallique pour des applications exigeant une rigidité et une résistance mécanique exceptionnelles. Produites par dépôt chimique en phase vapeur (CVD) sur un filament de tungstène, les fibres de bore sont constituées de bore amorphe autour d'un noyau métallique. Cette méthode de fabrication confère aux fibres un diamètre relativement grand (environ 100–140 μm), supérieur à celui des fibres de carbone ou de verre, tout en maintenant une très haute résistance à la traction et un module d'élasticité élevé (environ 400 GPa).

Leur structure leur permet de résister à des températures élevées et à la corrosion, ce qui en fait un choix privilégié dans des domaines comme l'aéronautique, l'aérospatiale, ou certains secteurs de la défense (Figure 1.12). Cependant, leur coût de production élevé, leur poids relativement important (densité $\approx 2.6 \text{ g/cm}^3$), ainsi que leur fragilité en compression transversale, ont limité leur usage industriel à des niches spécifiques.

Les fibres de bore sont particulièrement efficaces lorsqu'elles sont utilisées comme renforts dans des matrices métalliques, en raison de leur bonne compatibilité thermique et mécanique avec les alliages de titane ou d'aluminium [25].

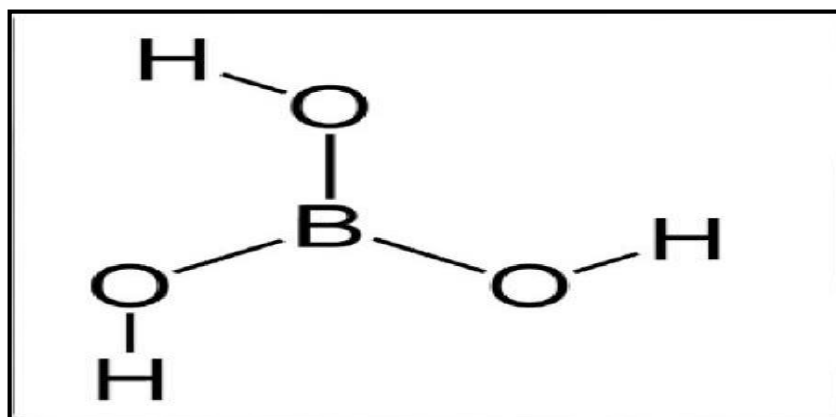


Fig. 1.12. Structure chimique de Bore [26].

Chapitre 1. Étude bibliographique

1.8.4. Diborure de Titane (TiB_2)

Le diborure de titane (TiB_2) est un matériau largement utilisé dans l'industrie pour ses propriétés mécaniques et thermiques exceptionnelles. Il est principalement employé comme renfort dans les matrices en aluminium, où il contribue à l'amélioration de la résistance et de la dureté du matériau. Les particules de diborure de titane, intégrées dans une matrice métallique, agissent comme des éléments porteurs de charge, permettant ainsi d'optimiser les performances du composite. Ces particules facilitent le transfert de charge entre la matrice et le renfort, ce qui conduit à un renforcement de la résistance à la traction, de la dureté et de la résistance à l'usure du composite. La structure chimique hexagonale du diborure de titane, où chaque atome de titane est entouré d'atomes de bore, est à l'origine de ses propriétés mécaniques et thermiques exceptionnelles (Figure 1.13). Dans les composites, les particules de TiB_2 sont généralement uniformément dispersées dans la matrice, favorisant une interaction optimale entre les composants du matériau [27-29].

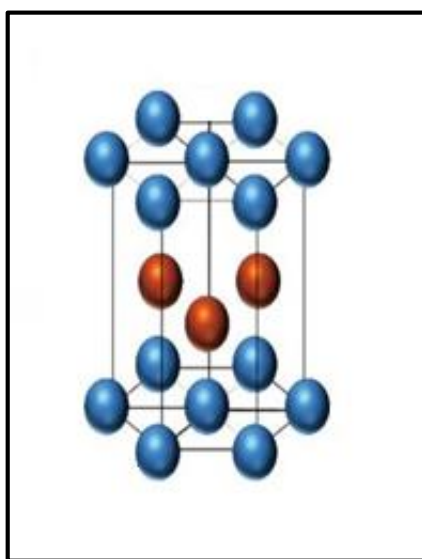


Fig. 1.13. Structure cristalline hexagonale du diborure de titane (TiB_2). Les atomes bleus et rouges sont respectivement des atomes de Ti et de B [31].

Dans le cadre des applications industrielles, les propriétés exceptionnelles du diborure de titane, découlant de sa structure cristalline, de sa stœchiométrie et des conditions de traitement utilisées pour sa synthèse, trouvent leur application dans divers domaines. Ainsi, dans le secteur de l'outillage et de la coupe, le diborure de titane est utilisé pour la fabrication d'outils de coupe et de pièces d'usure. Dans le domaine de la motorisation, il constitue un élément crucial des composants du moteur. Par ailleurs, le diborure de titane est employé dans les systèmes de gestion thermique et de blindage balistique, démontrant ainsi sa versatilité et son utilité dans

Chapitre 1. Étude bibliographique

des contextes exigeants. En outre, l'utilisation du diborure de titane s'étend à des applications nucléaires, notamment dans l'électronique et les capteurs, où sa capacité à résister à la radioactivité est un atout majeur. Enfin, l'impression 3D ouvre de nouvelles opportunités pour l'utilisation du diborure de titane, en raison de ses propriétés exceptionnelles et de sa malléabilité. Une analyse approfondie de ces aspects s'avère pertinente pour une meilleure compréhension des propriétés du di borure de titane [30].

1.9. Avantages et inconvénients des matériaux composites

Les matériaux composites offrent de nombreux avantages liés à leurs propriétés supérieures comparativement aux matériaux traditionnels utilisés pour des applications similaires [32]. Le tableau 1.4 propose une synthèse comparative mettant en évidence les principaux atouts et limitations associés à l'utilisation de ces matériaux.

Critère	Avantages	Inconvénients
Poids/ Volume	Faible masse volumique pour des performances équivalentes	Sensibilité à certains chocs ponctuels ou impacts
Propriétés mécaniques	Excellente résistance mécanique (traction, flexion, impact) grâce aux fibres de renfort	Comportement fragile en compression pour certains types de composites
Résistance chimique/ Corrosion	Bonne tenue face aux agressions chimiques et à la corrosion, assurée par la matrice	Dégradation possible en milieu humide selon la matrice ou l'interface utilisée
Durabilité/ Longévité	Grande stabilité dimensionnelle et propriétés mécaniques durables dans le temps	Difficilement recyclable, surtout pour les matrices thermodurcissables
Flexibilité de conception	Facilité à produire des formes complexes et sur mesure	Coûts de production élevés pour les composites à haute performance
Fabrication/ Mise en œuvre	Processus adaptés aux séries limitées et à la personnalisation	Procédés parfois complexes et énergivores

Tableau 1.4. Avantages et inconvénients des matériaux composites [32].

B. Matériaux nanocomposites

1.1. Introduction

Au cours des dernières décennies, les matériaux nanocomposites ont suscité un intérêt croissant en raison de leurs propriétés physiques, chimiques et fonctionnelles remarquablement améliorées par rapport aux matériaux conventionnels. Ces systèmes se composent d'une matrice polymère dans laquelle sont dispersées des nanoparticules, formant une structure homogène à l'échelle nanométrique. Cette configuration leur confère des performances accrues, notamment en termes de résistance mécanique, de conductivité thermique et électrique, ainsi que de stabilité chimique.

La présente étude a pour objectif d'explorer un ensemble de concepts fondamentaux nécessaires à la compréhension approfondie des propriétés physico-chimiques des matériaux nanocomposites. Elle s'articule autour de la définition de ces matériaux, de l'identification de leurs composants essentiels, de leur classification principale, ainsi que des critères déterminant leur sélection en fonction des exigences propres à diverses applications industrielles et technologiques. Une attention particulière sera portée à deux polymères d'intérêt stratégique : le polystyrène (PS : $(C_8H_8)_n$) et le polyfluorure de vinylidène (PVDF). Ces polymères, du fait de leurs caractéristiques physiques et chimiques distinctives, se révèlent être des matrices de choix pour l'amélioration des performances électriques, thermiques et mécaniques des nanocomposites.

Par ailleurs, la présente étude inclura une analyse approfondie des champs d'application des nanocomposites polymères, en particulier ceux incorporant du graphène. Une attention particulière sera portée aux secteurs technologiques de pointe tels que l'électronique, l'énergie et les matériaux intelligents. L'objectif principal est de mettre en lumière le potentiel technologique de ces matériaux en identifiant et en examinant les facteurs déterminants influençant leurs performances. Cette démarche vise à encourager le développement de solutions innovantes adaptées aux exigences des applications émergentes et futures.

1.2. Définition d'un matériau nanocomposite

Le terme 'nanocomposite' est devenu courant dans le langage scientifique contemporain, bien qu'il soit parfois employé de manière imprécise. Il convient de rappeler que les matériaux composites existent depuis plusieurs décennies. De manière générale, un matériau composite se définit comme une combinaison de deux ou plusieurs phases distinctes, conçue pour associer

Chapitre 1. Étude bibliographique

les propriétés avantageuses de chaque constituant tout en minimisant leurs limitations respectives. Ces matériaux peuvent être issus de combinaisons diverses, comme le bois, les tissus biologiques (ex. : os) ou encore des mélanges de polymères immiscibles [33], [34].

Dans le cas des nanocomposites, il s'agit de matériaux composites dont l'une des phases, typiquement la phase de renforcement, présente des dimensions nanométriques, généralement comprises entre 1 et 100 nanomètres. Ces matériaux se composent ainsi de deux phases chimiquement distinctes, séparées par une interface bien définie. Plus spécifiquement, un nanocomposite est constitué d'une matrice (polymère, céramique, ou métal) dans laquelle sont dispersées de très faibles quantités (généralement entre 1 et 5 % en masse) de nanoparticules organiques ou inorganiques [36]. L'intégration de ces nano-charges permet d'améliorer significativement les propriétés mécaniques, thermiques, électriques et barrières de la matrice initiale.

1.3. Constituants des nanocomposites

Dans le cadre de la présente étude, une analyse rigoureuse de la composition des nanocomposites s'impose afin de mieux comprendre les interactions entre leurs différentes phases constitutives. Ces matériaux, à structure multiphasique, sont généralement constitués d'une matrice principale intégrant une phase de renfort ainsi que des charges nanométriques, dont les propriétés émergent de contrastes chimiques et structuraux spécifiques (Figure 1.14).

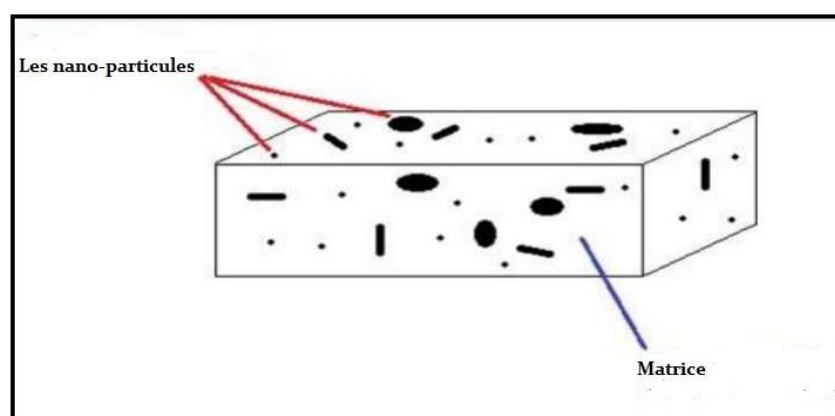


Fig. 1.14. Représentation schématique d'un matériau nanocomposite [35].

La matrice, qui constitue la phase continue du matériau, joue un rôle fondamental en assurant la cohésion et l'uniformité de l'ensemble. En fonction des exigences de l'application visée, elle peut être de nature polymérique, céramique ou métallique [37]. La phase de renfort, introduite

Chapitre 1. Étude bibliographique

au sein de la matrice, vise à améliorer significativement les propriétés mécaniques du composite, notamment sa rigidité et sa résistance à la traction. Elle est souvent constituée de fibres ou filaments présentant de hautes performances mécaniques. Enfin, les charges nanométriques, souvent incorporées sous forme de nanoparticules ou de microbilles, participent à l'optimisation des propriétés globales du nanocomposite. Leur présence peut renforcer les caractéristiques mécaniques, mais également influencer les propriétés électriques, thermiques ou optiques du matériau [38].

1.4. Classification des nanocomposites

Les nanocomposites peuvent être classés selon plusieurs critères, notamment la nature de la matrice, le type de renfort, ou encore la morphologie des charges à l'échelle nanométrique. Cette classification permet d'identifier les caractéristiques spécifiques de chaque catégorie et de mieux adapter le choix du matériau aux exigences des applications industrielles et techniques [39], [40].

1.4.1. Selon la nature de la matrice

Les matrices peuvent être de différentes natures, chacune influençant les propriétés finales du nanocomposite :

- ***Les nanocomposites à matrice organique ou polymérique*** : ce sont les plus couramment utilisés, en raison de leur légèreté, de leur facilité de mise en œuvre et de leur faible coût. Ils sont combinés à des nanoparticules pour améliorer les propriétés mécaniques, thermiques, électriques ou barrières. Ils présentent une stabilité thermique jusqu'à environ 200 à 300 °C.
- ***Les nanocomposites à matrice métallique*** : utilisés pour leurs hautes conductivités thermique et électrique, ils conviennent aux applications structurelles et fonctionnelles exigeantes. Ils sont capables de résister à des températures pouvant atteindre environ 600 °C.
- ***Les nanocomposites à matrice céramique*** : souvent utilisés dans les environnements à haute température, ils offrent une excellente rigidité, une bonne stabilité thermique, mais présentent une faible ténacité. Ils se distinguent par une résistance thermique pouvant atteindre 1000 °C.

Chapitre 1. Étude bibliographique

1.4.2. Selon la morphologie des charges

La forme et la dimension des charges nanométriques jouent un rôle clé dans les propriétés du nano-composite :

❖ Nanoparticules tridimensionnelles

Dans le cadre de la présente étude, il s'avère essentiel de considérer les nanoparticules tridimensionnelles, dont les trois dimensions sont de l'ordre du nanomètre (Figure 1.15 (c)). Ces particules, caractérisées par une taille extrêmement réduite, exhibent des propriétés physiques uniques qui varient en fonction de leur composition chimique et de leur structure. Cette catégorie regroupe plusieurs types de nanoparticules [40], notamment :

- **Les agrégats d'atomes**, constitués d'ensembles cohérents d'unités atomiques, représentant une classe intermédiaire entre les molécules et les solides, aux propriétés quantiques singulières ;
- **Les nanoparticules métalliques**, formées à partir de métaux tels que l'or, l'argent, le fer, le cobalt ou le platine, dont les propriétés électroniques et catalytiques sont particulièrement exploitées dans les domaines de l'électronique, de la catalyse et des biotechnologies ;
- **Les fullerènes**, une forme spécifique de structures carbonées, se présentent sous des configurations sphériques ou ellipsoïdales fermées, et offrent des perspectives intéressantes pour des applications avancées dans les domaines optoélectroniques et médicaux.

L'incorporation de ces nanoparticules dans des matrices composites vise principalement à améliorer certaines propriétés physico-chimiques, telles que les performances optiques, électriques ou magnétiques. Le renforcement mécanique, bien que présent, demeure généralement secondaire par rapport aux bénéfices fonctionnels recherchés.

❖ Nanoparticules bidimensionnelles

Les nano-fibres se caractérisent par une morphologie allongée, dans laquelle deux de leurs dimensions sont de l'ordre du nanomètre, tandis que la troisième (leur longueur) est significativement plus grande (Figure 1.15 (b)). Un paramètre déterminant de ces structures est leur facteur de forme, défini comme le rapport entre la longueur et le diamètre, qui dépasse

Chapitre 1. Étude bibliographique

généralement 100 [40]. Ce facteur confère aux nano-fibres des propriétés anisotropes particulièrement recherchées dans diverses applications fonctionnelles et structurales.

Les nano-fibres peuvent être classées en deux grandes catégories :

- **Les fibres creuses**, dont les nanotubes de carbone représentent les exemples les plus emblématiques. Celles-ci sont intensivement étudiées en raison de leurs propriétés remarquables, notamment une conductivité électrique élevée, une excellente résistance mécanique et une grande stabilité chimique.
- **Les fibres pleines**, également appelées nano-fils, dont les performances dépendent étroitement de la nature des matériaux constitutifs et de leur organisation cristalline. Ces structures présentent un fort potentiel pour des applications en nanotechnologie, optoélectronique et capteurs.

❖ Nanoparticules unidimensionnelles : les nano-feuillets

Dans le cadre de cette étude, une attention particulière est portée aux nanoparticules unidimensionnelles, communément appelées feuillets. Ces structures se caractérisent par une longueur et une largeur généralement micrométriques, tandis que leur épaisseur se situe à l'échelle nanométrique (Figure 1.15 (a)). Le facteur de forme, défini comme le rapport entre la longueur et l'épaisseur du feuillet, constitue un paramètre déterminant dans l'évaluation de leurs propriétés physico-chimiques [40].

L'orientation et l'organisation de ces feuillets au sein d'une matrice influencent fortement les performances globales du matériau composite. Ces nanoparticules proviennent principalement de matériaux naturellement stratifiés, tels que les hydroxydes doubles lamellaires (HDL), qui sont couramment utilisés dans les nanocomposites à matrice polymère.

Parmi les feuillets les plus étudiés, les silicates en feuillets occupent une place de choix en raison de leur grande surface spécifique, de leur aptitude à l'échange ionique et de leur remarquable capacité d'adsorption. Les argiles gonflantes, ou smectites, se distinguent quant à elles par la présence simultanée de charges de surface positives et négatives, ce qui favorise des interactions complexes avec les polymères et d'autres constituants du composite [40].

Grâce à leurs caractéristiques morphologiques et fonctionnelles, les nano-feuillets trouvent des applications prometteuses dans des domaines technologiques avancés, tels que les revêtements protecteurs, les capteurs sensibles ou encore les membranes sélectives fonctionnalisées [40].

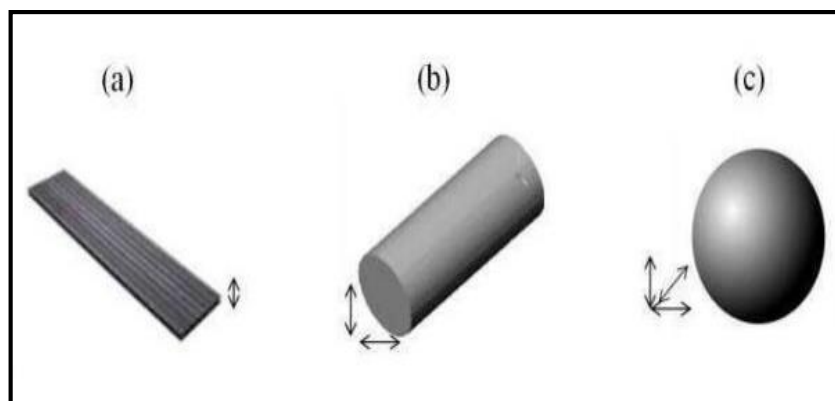


Fig. 1.15. Classification des matériaux nanocomposites en fonction de la morphologie des renforts : (a) nano-feuillet ; (b) nano-fibre ; (c) nanoparticule [39].

1.4.3. Selon la nature chimique des charges

Les charges nanométriques peuvent également être distinguées selon leur composition :

- **Inorganiques** : telles que les oxydes métalliques (TiO_2 , ZnO), les argiles ou les nanoparticules métalliques, elles améliorent la stabilité thermique et la rigidité.
- **Organiques** : comme les fullerènes ou certaines structures polymériques, elles permettent une meilleure compatibilité avec les matrices organiques.
- **Hybrides** : combinant des composants organiques et inorganiques pour tirer parti des avantages de chacun.

1.5. Exemples d'applications des matrices et des nanoparticules utilisées

1.5.1. Matrice en polystyrène (C_8H_8)_n

Le polystyrène (PS) est un polymère aromatique synthétique obtenu par polymérisation du monomère de styrène. Sa structure moléculaire se compose de longues chaînes linéaires répétitives d'unités de styrène, représentées par la formule générale $(\text{C}_8\text{H}_8)_n$, où n désigne le degré de polymérisation (Figure 1.16). Ce polymère présente une configuration linéaire avec des groupes aromatiques latéraux, lesquels confèrent au matériau ses propriétés caractéristiques. Le polystyrène se distingue par une combinaison de rigidité, de transparence et de fragilité, des attributs qui en font un matériau de choix pour de nombreuses applications industrielles [41], [42].

Dans le domaine médical, il est couramment utilisé pour la fabrication de dispositifs stériles tels que les tubes à essai, les composants de diagnostic et divers équipements à usage unique.

Chapitre 1. Étude bibliographique

Dans l'industrie automobile, il entre dans la fabrication de pièces intérieures comme les boutons, les tableaux de bord ou encore les matériaux d'insonorisation. Son utilisation est également répandue dans le secteur de l'emballage alimentaire, où ses propriétés isolantes et sa légèreté permettent de prolonger la conservation des aliments tout en réduisant les coûts de production.

Par ailleurs, le polystyrène est fréquemment employé dans l'emballage de biens de consommation, notamment pour la protection d'articles fragiles tels que les boîtiers de DVD, les boîtes d'œufs ou les dispositifs électroniques. Grâce à ses qualités d'isolation thermique, il est également utilisé dans les appareils électroménagers tels que les réfrigérateurs et congélateurs. Enfin, ses propriétés mécaniques et esthétiques en font un matériau privilégié pour les boîtiers d'équipements électroniques, notamment les téléviseurs, les ordinateurs et d'autres périphériques [41].

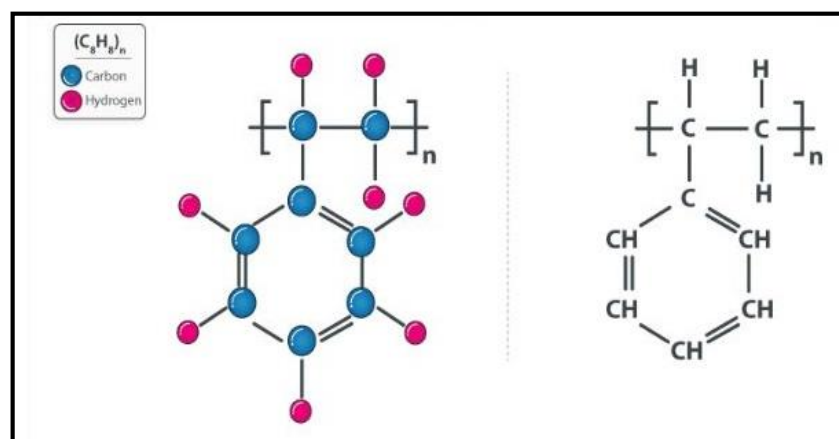


Fig. 1.16. Structure chimique du polystyrène (PS) [41].

1.5.2. Matrice en polyfluorure de vinylidène (PVDF)

Le polyfluorure de vinylidène (PVDF) est un fluoropolymère thermoplastique semi-cristallin, caractérisé par une structure partiellement ordonnée pouvant se développer sous des conditions physiques et chimiques spécifiques. Ce polymère est obtenu par polymérisation du monomère de fluorure de vinylidène ($C_2H_2F_2$) (Figure 1.17). Il se distingue par une excellente résistance chimique, une stabilité thermique élevée, des propriétés piézoélectriques notables, ainsi qu'une bonne résistance mécanique. En raison de cet ensemble de caractéristiques, le PVDF est couramment employé comme matrice dans les matériaux composites, en particulier dans des

Chapitre 1. Étude bibliographique

domaines exigeant une grande durabilité, tels que les capteurs, les accumulateurs électrochimiques (batteries) et les revêtements techniques [43], [44].

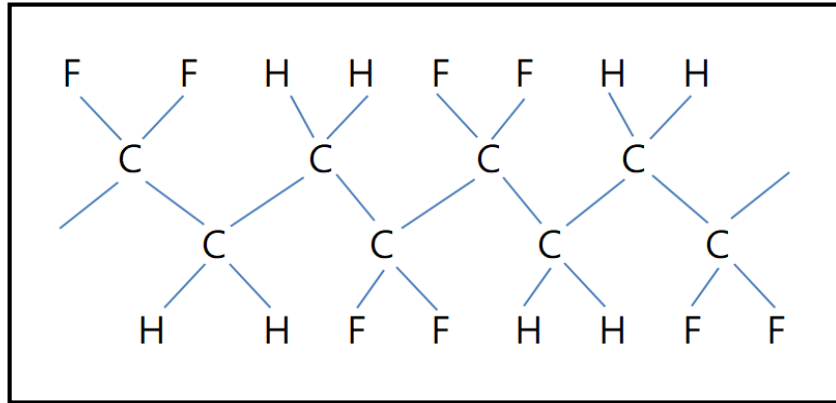


Fig. 1.17. Structure chimique du polyfluorure de vinylidène (PVDF) [45].

1.5.3. Nano-feuillets de graphène (Gn)

Le graphène est un matériau de pointe reconnu pour l'exceptionnelle combinaison de ses propriétés physico-chimiques. Il se distingue notamment par une résistance mécanique remarquable, nettement supérieure à celle de l'acier, tout en conservant une masse extrêmement faible. Cette synergie entre robustesse et légèreté suscite un intérêt croissant de la part des communautés scientifique et industrielle. L'incorporation du graphène dans des matrices composites, qu'elles soient polymériques ou métalliques, permet d'améliorer significativement les performances mécaniques des matériaux hôtes, tout en contribuant à leur allègement. Ces propriétés confèrent au graphène un potentiel d'application élevé dans des domaines stratégiques tels que l'aéronautique, le génie civil ou encore l'électronique mobile. Par ailleurs, le graphène est reconnu comme le meilleur conducteur thermique actuellement connu, ce qui en fait un matériau de choix pour la gestion thermique dans les dispositifs électroniques. Il est notamment utilisé dans la fabrication de dissipateurs thermiques et de films de dissipation pour les smartphones et les systèmes d'éclairage à LED [46].

Le graphène possède des propriétés mécaniques et thermiques remarquables, auxquelles s'ajoutent des performances prometteuses en matière de stockage d'énergie. Sa structure atomique bidimensionnelle (Figure 1.18), extrêmement fine, associée à un rapport surface/volume élevé, favorise une augmentation significative de la capacité et de la rapidité de charge des dispositifs de stockage tels que les batteries et les super-condensateurs.

Chapitre 1. Étude bibliographique

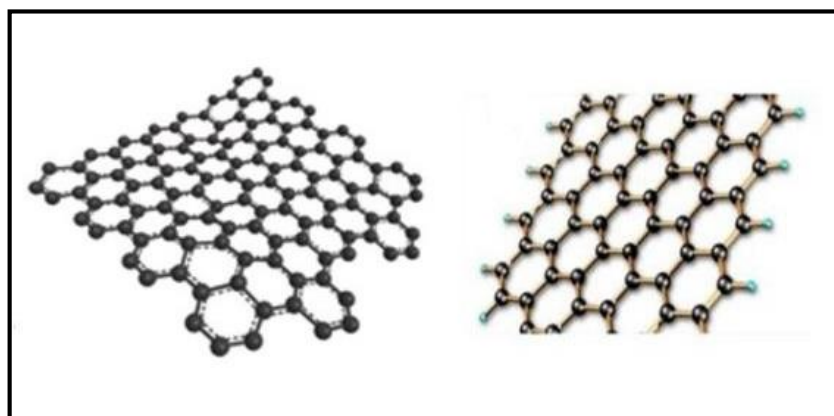


Fig. 1.18. Structure bidimensionnelle (2D) du graphène [46], [47].

Par ailleurs, le graphène se distingue par son potentiel dans un large éventail d'applications technologiques avancées. Il est notamment envisagé dans la conception de revêtements anticorrosion, de capteurs de haute précision, de dispositifs électroniques flexibles, de panneaux photovoltaïques à haut rendement, ainsi que dans divers domaines de la biotechnologie (Figure 1.19). Dans ce dernier cas, il ouvre des perspectives innovantes, notamment dans le séquençage de l'ADN et l'administration ciblée de médicaments. Bien que les propriétés exceptionnelles du graphène en fassent un candidat de choix pour révolutionner de nombreux secteurs industriels, son déploiement à grande échelle reste tributaire des avancées technologiques relatives à sa production à faible coût et à son intégration dans les systèmes existants [46].

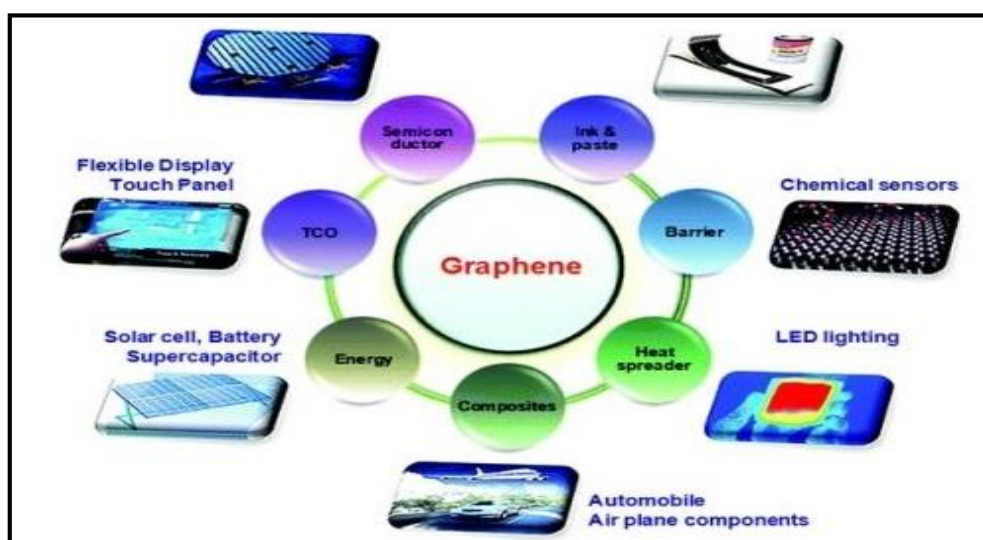


Fig. 1.19. Quelques exemples d'application du graphène [46].

1.6. Avantages des nanocomposites

Les composites à renfort micrométrique, bien qu'ayant permis d'importantes avancées technologiques, présentent certaines limitations intrinsèques liées à la nécessité de compromis entre différentes propriétés physico-mécaniques. Par exemple, l'amélioration de la résistance mécanique peut s'effectuer au détriment de la ductilité ou de la transparence optique du matériau. Les nanocomposites apparaissent comme une solution prometteuse pour dépasser ces contraintes, en offrant une combinaison plus équilibrée et performante de propriétés fonctionnelles.

Les nanocomposites se distinguent des composites traditionnels par plusieurs avantages significatifs [35] :

- ❖ **Amélioration des propriétés mécaniques** : l'intégration de nanoparticules permet d'augmenter la résistance mécanique sans altérer la ductilité du matériau. En raison de leur taille nanométrique, ces particules réduisent les concentrations locales de contraintes, ce qui favorise une répartition homogène des charges mécaniques.
- ❖ **Optimisation des propriétés thermiques et optiques** : les nanocomposites présentent une meilleure conductivité thermique, ainsi que des propriétés optiques uniques qui échappent aux prédictions des modèles conventionnels. La taille réduite des nanoparticules (inférieure à la longueur d'onde de la lumière visible, soit 380–780 nm) permet de préserver la transparence du matériau et d'assurer une finition de surface de haute qualité.
- ❖ **Augmentation de la surface interfaciale** : la réduction de l'échelle des renforts induit une augmentation notable de la surface spécifique des interfaces entre la matrice et les charges nanométriques. Cette caractéristique joue un rôle déterminant dans la singularité des propriétés observées, l'interaction matrice/renfort étant majoritairement gouvernée par la nature de l'interface.

Ainsi, grâce à leur microstructure particulière et à l'intensité des interactions interfaciales, les nanocomposites offrent une alternative innovante aux matériaux composites classiques, tout en élargissant le champ des applications industrielles et technologiques.

Chapitre 1. Étude bibliographique

1.7. Références

- [1] F. Neghar, "Etude des propriétés thermiques d'un matériau composite à matrice polymère" *Mémoire de Master*, Université de Jijel, Algérie, 2020.
- [2] T. Outtas, "Généralité sur les matériaux composites", Chapitre I, Université de Batna2, Algérie.
- [3] A. Oukazi, "Elaboration et caractérisation des composites stratifiés à base de fibres de carbone et de fibres de verre à usage aéronautique" *Mémoire de Master*, Ecole nationale polytechnique d'Alger, Algérie, 2019.
- [4] N. Ghebrid, "Etude des problèmes de conduction thermique dans un matériau composite à matrice polymère pigmenté de dioxyde de Titane" *Thèse de Doctorat*, Université Ferhat Abbas-Setif 1, Algérie, 2018.
- [5] Y. Djeboun, "Etude de la rupture en mode I d'ouverture des matériaux composites" *Mémoire de Magister*, Université de Biskra, Algérie, 2004.
- [6] "Matériaux composites. Chapitre 1 : Généralités sur les matériaux composites", Université d'El Oued, Algérie, 2021.
- [7] I. Belaid, S. Fouhama, W. Sahraoui, "Les matériaux composites à base d'une matrice polymérique et charge végétale" *Mémoire de Licence Académique*, Université d'El-Oued, Algérie, 2013.
- [8] P. N. Khanam, M. Al-Ali Maadeed, "Processing and characterization of polyethylene-based composites" *Adv. Manuf.: Polym. & Compos. Sci.* **2015**, 1(2), 63-79.
- [9] H. H. Molinaro, "Les grandes familles de matériaux composites - CultureSciences de l'Ingénieur", Université Saclay, Paris, France, 2015.
- [10] M. Y. Rouab, M. L. Ouhdadou, "Caractérisation des matériaux composites par les méthodes non destructives" *Mémoire de Master*, Université de Blida 1, Algérie, 2020.
- [11] P. C. Georgel, "Résines époxydes renforcées avec des fibres naturelles" *Thèse de Doctorat*, Université Laval, France, 2009.
- [12] F. Lepiller, S. Remond, & J. Hatsch "Contrôle non destructif de structures composites pour l'aéronautique" *Cofrend. 2011*, National NDT Seminar & Exhibition, May 24-27, 2011, Dunkerque, France, 2012.
- [13] F. Benard, "Etude de l'influence des charges de silice sur le vieillissement des résines époxyde sous irradiation" *Thèse de Doctorat*, Université du Maine, France, 2004.
- [14] E. G. M. Lissouck, "Contribution à la détermination des paramètres ultrasonores des gondolements des fibres dans un matériau composite à matrice céramique renforcé des

Chapitre 1. Étude bibliographique

- fibres du «rhectophyllum camerunense»" *Mémoire de Master*, Université Douala, Cameroun, 2009.
- [15] H. H. Molinaro, "Matériaux composites et structures composites-CultureSciences de l'Ingénieur", Université Saclay, Paris, France, 2015.
- [16] R. N. Kumer, A. P. Pizzi, "Adhesives for Wood and Lignocellulosic Materials, Chapter 19: Polymer Matrix: Polyethylene", Edited by John Wiley & Sons, Inc., USA, 2019.
- [17] K. Sharma, "Polyethylene: Structure, Properties, Types, Uses", Science info, 2024.
- [18] "High Density Polyethylene - Structure, Properties, and Uses", Byju's.
<https://byjus.com/chemistry/high-density-polyethylene/>
- [19] T. Evangelia, M. Tara, C. Samiotaki, A. Zamboulis, K. Chrissafis, and D. N. Bikiaris "Preparation and Characterisation of High-Density Polyethylene/Tannic Acid Composites" *Polymers* **2024**, 16(23), 3398.
- [20] K. Schulte, F. V. Lacroix, "2.07 High-Density Polyethylene Fiber/Polyethylene Matrix Composites" *Comprehensive Composite Materials* **2000**, 2, 231-248.
- [21] P. Olesik, M. Godzierz, M. Koziol, J. Jala, U. Szeluga, J. Myalski, "Structure and Mechanical Properties of High-Density Polyethylene Composites Reinforced with Glassy Carbon" *Materials* **2021**, 14(14), 4024.
- [22] F. Quadrini, G. Patrizii, A. Proietti, L. Iorio, D. Bellisario, L. Santo, "Compression Molding of Low-Density Polyethylene Matrix/Glass-Fiber-Reinforced Thick Laminates" *Polymers* **2024**, 16(19), 2722.
- [23] T. J. Singh, S. Samanta "Characterization of Kevlar Fiber and Its Composites: A Review" *Materialstoday: Proceeding* **2015**, 2, 1381-1387.
- [24] R. Prabu , K. M. Kumar, R. Selvam, and K. R. Vijaya Kumar, "Comparative Study of Shape Memory Alloy Reinforced Kevlar Polymer Composite in Sheet and Wire Form with Plain Kevlar Polymer Composite" *Polymer Korea* **2021**, 45(3), 353-362.
- [25] "Fibre de Bore", Glossaire.
<https://cybel.fr/glossaire-materiaux-composite/fibre-de-bore>
- [26] L. Pizzorno, "Nothing Boring About Boron" *Integrative Medicine* **2016**, 14(4), 35-48.
- [27] K. Rane, N. Dhokey, "On the Formation and Distribution of in Situ Synthesized TiB₂ Reinforcements in Cast Aluminium Matrix Composites" *J. Compos. Sci.* **2018**, 2(3), 52.
- [28] S. Ko, H. Park, Y-H. Lee, S. Shin, I. Jo, J. Kim, S-B. Lee, Y. Kim, S-K. Lee, S. Cho, "Fabrication of TiB₂-Al 1050 Composites with Improved Microstructural and

Chapitre 1. Étude bibliographique

- Mechanical Properties by a Liquid Pressing Infiltration Process" *Materials* **2020**, 13(7), 1588.
- [29] J. Kumar, V. K. Sharma, A. P. Singh, "Study the effects of TiB₂ reinforcement on the AA-2014 matrix fabricated by friction stir processing" *Res. Eng. Struct. Mater.* **2025**, 11(2), 557-567.
- [30] "Poudre De Diborure De Titane".
<https://met3dp.com/fr/titanium-diboride-powder-20240123/>
- [31] M. Sun, C-Y. Wang, J-P. Liu "Anisotropic elastic properties and ideal uniaxial compressive strength of TiB₂ from first principles calculations" *Chinese Physics B* **2018**, 27(7), 077103.
- [32] "L'utilisation du composite", le composite au service des professionnels et particuliers, ampcomposite.
<https://www.amp-composite.com/le-composite/>
- [33] A. Kelly, "Concise Encyclopedia of Composite Materials", New York, 1994.
- [34] W. D. Callister, "Materials Science and engineering an introduction", chapter 16, Wiley, 2003.
- [35] O. Ben Kahla, O. Guermit, N. Manane, K. Salhi, S. Zidi, "Etude bibliographique des nanocomposites et de leurs applications" *Mémoire de Master*, Université d'El Oued, Algérie, 2023.
- [36] M. A. Zenasni, "Synthèse et caractérisation des nanocomposites biodégradables" *Thèse de Doctorat*, Université de Lorraine, France, 2015.
- [37] S. Bizet, "Nanomatériaux hybrides organique/ inorganique par copolymérisation de polysilsesquioxanes polyédriques (POSSTM) avec des monomères méthacrylates" *Thèse de Doctorat*, INSA - Lyon, France, 2004.
- [38] P. Vitoux, "Elaboration de nanocomposites 'nanoparticules métalliques/ polymère' en milieux fluides supercritiques" *Thèse de Doctorat*, L'université Bordeaux 1, France, 2008.
- [39] D. M. Marquis, E. Guillaume, C. Chivas-Joly, "Properties of nano-fillers in polymer" *Nanocomposites and Polymers with Analytical Methods* **2011**, InTech, p 261-284.
- [40] M. Ambid, "Evaluation de nanocomposites polypropylène/silicate pour l'isolation électrique : étude des phénomènes de polarisation, de conduction et des propriétés optiques" *Thèse de Doctorat*, Université Toulouse 3, France, 2007.
- [41] "Study Materials -Polystyrene - (C₈H₈)_n", Byju's.

Chapitre 1. Étude bibliographique

- <https://byjus.com/chemistry/polystyrene/>
- [42] W. H. TesfaMariam, "Polystyrene Uses, Features, Production and Definition", 2022.
<https://www.xometry.com/resources/materials/polystyrene/>
- [43] L. Ruan, X. Yao, Y. Chang, L. Zhou, G. Qin, X. Zhang, "Properties and Applications of the β Phase Poly(vinylidene fluoride)" *Polymers* **2018**, 10 (3), 228.
- [44] R. Dallaev, T. Pisarenko, D. Sobola, F. Orudzhev, S. Ramazanov, T. Trčka, "Brief Review of PVDF Properties and Applications Potential" *Polymers* **2022**, 14(22), 4793.
- [45] "PVDF", Unictron Technologie Corp, Peizoelectric Technologies.
<https://www.unictron.com/piezoelectric-components/piezoelectric-technologies/pvdf/>
- [46] S. Ben Salk, "Graphène et matériaux 2d : Techniques de transfert, fabrication d'hétérostructures et applications" *Thèse de Doctorat*, Université de Lille, France, 2020.
- [47] A. Bouguelaa, A. Farfar, "Synthèse chimique et électrochimique d'oxyde de graphène réduit et des composites azotés à base de pyrrole et d'aniline" *Mémoire de Master*, Université de Guelma, Algérie, 2020.

CHAPITRE 2

**Analyse du Comportement
Mécanique d'un Composite
Élastique à Matrice Polymère
en Polyéthylène Renforcé Par
des Fibres de Bore et de
Kevlar 49**

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

2.1. Introduction

Durant les deux dernières décennies, les propriétés des matériaux composites ont fait l'objet d'études actives tant sur le plan théorique que sur le plan expérimental. Ces matériaux composés de deux ou plusieurs constituants ont de très bonnes propriétés mécaniques et peuvent prendre différentes formes, ce qui explique leur popularité croissante sur le marché mondial. En effet, les matériaux composites sont utilisés dans de nombreux secteurs industriels et ont donc des défis complexes à relever [1].

Le recours à des modèles théoriques permet de mieux cerner les propriétés mécaniques des composites. Ces modèles sont essentiels pour comprendre comment les matériaux réagissent, surtout en mécanique. Ils permettent d'analyser comment certaines propriétés fondamentales, comme la masse volumique, le module d'Young (longitudinal et transversal), ainsi que la contrainte et la déformation à la rupture, évoluent sous différentes conditions de sollicitation, notamment en traction.

L'objectif de cette étude est de prédire les propriétés mécaniques des matériaux composites unidirectionnels formés d'une matrice en polyéthylène de haute densité (PEHD) renforcée par deux types de fibres minérales : le bore (B) et le Kevlar 49. Pour ce faire, nous nous sommes attachés à examiner l'effet de la nature et la taille des fibres sur les propriétés mécaniques du (PEHD). Afin d'enrichir cette étude, nous avons également analysé l'influence de la composition des matériaux sur leur comportement mécanique. Les résultats obtenus contribuent ainsi à une meilleure compréhension des conditions d'utilisation de ces matériaux composites dans les applications industrielles.

Les matériaux composites unidirectionnels à base de polymères sont largement utilisés dans les domaines de l'aéronautique, de l'automobile et du sport en raison de leur excellent rapport résistance/poids et de leur comportement mécanique ajustable. Ces composites sont constitués de fibres longues, généralement de carbone ou de verre, alignées dans une seule direction et noyées dans une matrice polymère. Cette configuration confère au matériau une forte anisotropie mécanique : les propriétés diffèrent significativement selon que les efforts sont appliqués dans la direction des fibres (direction longitudinale L) ou perpendiculairement à celles-ci (direction transverse T) comme le montre la figure (2.1). La direction longitudinale est caractérisée par une haute rigidité et une grande résistance, attribuées à la contribution principale des fibres, tandis que la matrice joue un rôle crucial dans le transfert de charge et la

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

résistance transversale. Cette synergie fibre-matrice permet d'optimiser les performances du matériau en fonction des sollicitations attendues dans l'application visée.

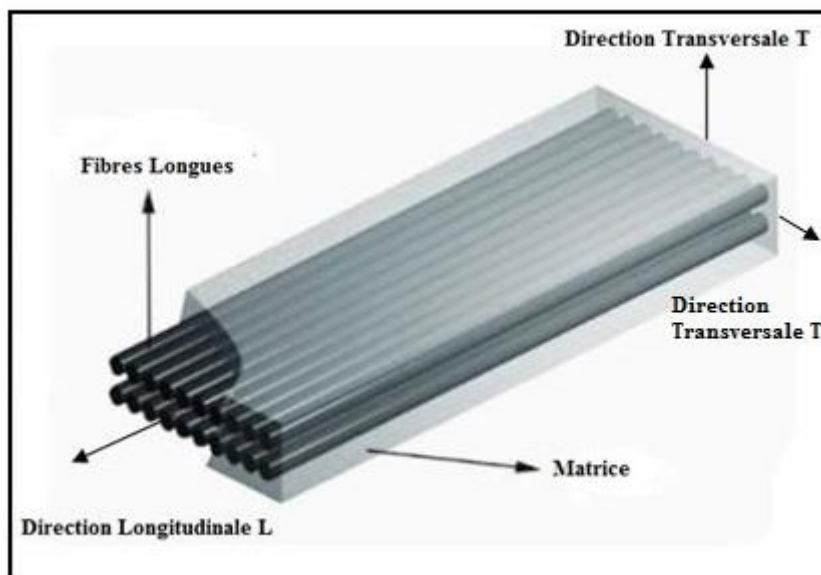


Fig. 2.1. Représentation schématique d'un matériau composite unidirectionnel [3].

2.2. Comportement élastique d'un composite unidirectionnel

La caractérisation des propriétés élastiques d'un composite unidirectionnel repose sur plusieurs modèles théoriques issus de la mécanique des milieux composites. Ces modèles permettent d'estimer les propriétés globales (macroscopiques) du composite à partir des propriétés des constituants (fibres - matrice) et de leur fraction volumique. Basé sur le fait que la matrice et le renfort sont deux matériaux en contact parfait, l'utilisation de la loi des mélanges peut servir à déterminer les propriétés du composite résultant. Chaque élément a un rôle précis, et c'est leur interaction qui donne les caractéristiques finales du matériau [4].

Dans le cadre de l'analyse du comportement élastique d'un composite unidirectionnel, il est essentiel d'établir une corrélation entre les contraintes appliquées et les déformations induites. En mécanique des matériaux, cette relation est régie par la loi de Hooke, qui décrit la proportionnalité entre ces grandeurs dans le domaine élastique [2].

$$\underline{\zeta} = \underline{K} \underline{\varepsilon} \quad (2.1)$$

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

où $\underline{\zeta}$ et $\underline{\varepsilon}$ représentent respectivement le tenseur des contraintes et celui des déformations exprimés comme suit [2] :

$$\underline{\zeta} = \begin{bmatrix} \zeta_{xx} & \zeta_{xy} & \zeta_{xz} \\ \zeta_{xy} & \zeta_{yy} & \zeta_{yz} \\ \zeta_{xz} & \zeta_{yz} & \zeta_{zz} \end{bmatrix} \quad (2.2)$$

$$\underline{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{xz} & \varepsilon_{yz} & \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (2.3)$$

Notons que les deux tenseurs $\underline{\zeta}$ et $\underline{\varepsilon}$ sont symétriques. Selon la notation de Voigt, la représentation vectorielle de ces deux tenseurs est la suivante [2] :

$$\begin{pmatrix} \zeta_{xx} \\ \zeta_{yy} \\ \zeta_{zz} \\ \zeta_{yz} \\ \zeta_{xz} \\ \zeta_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \zeta_1 \\ \zeta_2 \\ \zeta_3 \\ \zeta_4 \\ \zeta_5 \\ \zeta_6 \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

La matrice de rigidité \underline{K} , dont la définition sera détaillée dans la suite de cette étude, peuvent être représentées comme suit :

$$\underline{K} = \begin{bmatrix} K_{11} & K_{12} & K_{13} & K_{14} & K_{15} & K_{16} \\ K_{12} & K_{22} & K_{23} & K_{24} & K_{25} & K_{26} \\ K_{13} & K_{23} & K_{33} & K_{34} & K_{35} & K_{36} \\ K_{14} & K_{24} & K_{34} & K_{44} & K_{45} & K_{46} \\ K_{15} & K_{25} & K_{35} & K_{45} & K_{55} & K_{56} \\ K_{16} & K_{26} & K_{36} & K_{46} & K_{56} & K_{66} \end{bmatrix} \quad (2.6)$$

La loi de Hooke, qui établit la relation entre les déformations élastiques d'un matériau et les contraintes appliquées, s'exprime sous une forme adaptée aux propriétés du matériau considéré.

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

$$\begin{pmatrix} \zeta_1 \\ \zeta_2 \\ \zeta_3 \\ \zeta_4 \\ \zeta_5 \\ \zeta_6 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} K_{11} & K_{12} & K_{13} & K_{14} & K_{15} & K_{16} \\ K_{12} & K_{22} & K_{23} & K_{24} & K_{25} & K_{26} \\ K_{13} & K_{23} & K_{33} & K_{34} & K_{35} & K_{36} \\ K_{14} & K_{24} & K_{34} & K_{44} & K_{45} & K_{46} \\ K_{15} & K_{25} & K_{35} & K_{45} & K_{55} & K_{56} \\ K_{16} & K_{26} & K_{36} & K_{46} & K_{56} & K_{66} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

Les formules suivantes décrivent le comportement d'un matériau anisotrope, où la relation entre les contraintes et les déformations est gouvernée par une matrice de rigidité générale. Cependant, pour les matériaux isotropes et isotropes transverses, cette matrice se simplifie considérablement, reflétant leurs symétries spécifiques et réduisant ainsi le nombre de constants élastiques indépendants :

$$\begin{pmatrix} \zeta_1 \\ \zeta_2 \\ \zeta_3 \\ \zeta_4 \\ \zeta_5 \\ \zeta_6 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} K_{11} & K_{12} & K_{12} & 0 & 0 & 0 \\ K_{12} & K_{22} & K_{23} & 0 & 0 & 0 \\ K_{12} & K_{23} & K_{22} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{K_{22}-K_{23}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & K_{66} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & K_{66} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

Pour des raisons de simplicité, nous proposons de remplacer les indices de la direction, noté 1, par L, représentant la direction longitudinale et les indices des directions 2 et 3 par T, pour la direction transversale.

En introduisant le coefficient de Poisson, ν , les modules élastique, E et de cisaillement, G l'équation (2.8) devient alors :

$$\begin{pmatrix} \zeta_1 \\ \zeta_2 \\ \zeta_3 \\ \zeta_4 \\ \zeta_5 \\ \zeta_6 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} E_L & -E_L & -E_T & 0 & 0 & 0 \\ -E_L & \nu_{LT} E_T & \nu_{TL} E_T & 0 & 0 & 0 \\ \nu_{LT} E_T & E_T & -E_T & 0 & 0 & 0 \\ -E_T & -E_T & \nu_T E_T & 0 & 0 & 0 \\ \nu_{TL} E_T & \nu_T E_T & E_T & \frac{E_T}{2(1+\nu_T)} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & G_{LT} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & G_{LT} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

Il convient de noter que, pour un matériau isotrope dans le plan transverse, on peut écrire :

$$\frac{\nu_{TL}}{E_T} = \frac{\nu_{LT}}{E_L} \quad (2.10)$$

Le comportement élastique d'un matériau composite unidirectionnel nécessite la détermination de cinq propriétés indépendantes à savoir, les modules élastiques dans la direction longitudinal,

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

E_L et transversale, E_T , les coefficients de Poisson dans le plan transverse, ν_T et celui dans le plan formé par l'axe longitudinal et l'axe transversal, ν_{LT} , et le module de cisaillement dans le plan formé par l'axe longitudinal et l'axe transversal, G_{LT} . La détermination de ces cinq paramètres physiques nécessite à appliquer trois essais mécaniques simples, à savoir, un essai de traction dans la direction longitudinale (L), un autre la direction transversale (T) et un essai de traction hors axes où la force F est inclinée d'un angle θ par rapport à l'orientation des fibres.

Il convient toutefois de préciser que le présent travail est consacré à l'étude de l'impact des modules de Young longitudinal E_L et transversal E_T sur le comportement élastique des matériaux composites (PEHD/ B) et (PEHD/ Kevlar 49). En d'autre terme, le dernier essai n'est pas pris en considération dans cette étude.

Dans ce qui va suivre, nous allons exprimer en détail les formules issues de la loi des mélanges permettant de calculer les modules élastiques des composites renforcés par des composites fibreux. Un autre paramètre important qui nous a apparu judicieux de le traiter dans la présente étude est la masse volumique, μ . Cette grandeur permet d'évaluer non seulement les performances mécaniques, mais surtout le rapport performance/ poids du matériau, ce qui est essentiel dans la plupart des applications industrielles.

2.2.1. Masse volumique

Dans le cadre de l'évaluation des propriétés mécaniques des matériaux composites, diverses méthodologies d'analyse ont été élaborées. Ces approches permettent de calculer ces propriétés en fonction des caractéristiques des matrices et des renforts, ainsi que de leur proportion dans le matériau final. Ces approches s'appuient notamment sur la loi des mélanges, un modèle théorique essentiel pour l'analyse du comportement mécanique des matériaux composites. Cette loi est couramment utilisée pour étudier les propriétés élastiques des composites à matrice polymère. Elle permet notamment de déterminer la masse volumique du matériau en fonction de la fraction volumique comme suit [5] :

$$\mu_c = \mu_f \Phi_f + \mu_m (1 - \Phi_f) \quad (2.11)$$

dans laquelle μ_c , μ_m et μ_f représentent respectivement la masse volumique du matériau composite, de la matrice et celle du renfort. Tandis que Φ_f désigne la fraction volumique du renfort.

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

2.2.2. Module de Young dans le sens longitudinal du composite unidirectionnel

Comme il a été évoqué auparavant, pour pouvoir déterminer le module de Young longitudinal E_L , nous allons appliquer une force de traction, F , dans la direction longitudinale à un matériau composite unidirectionnel.

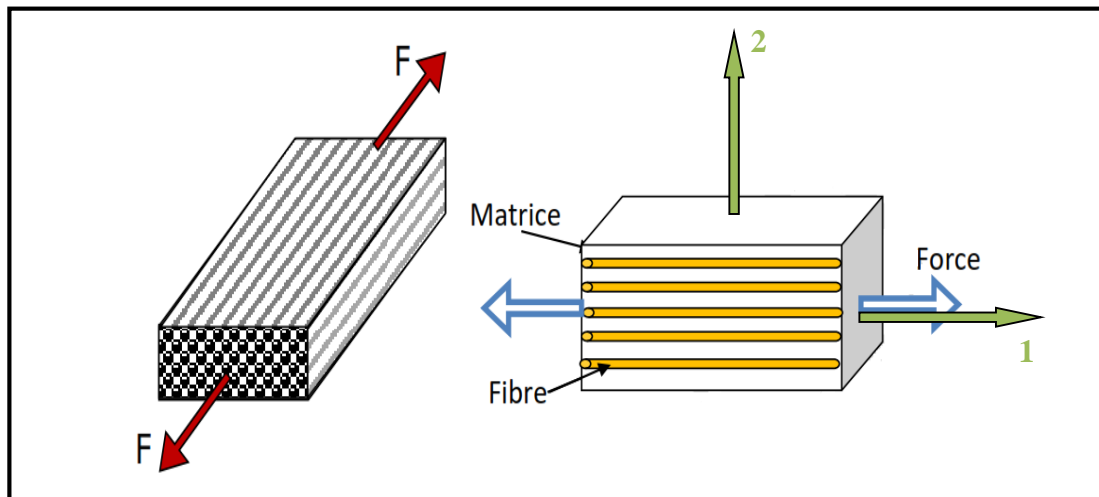


Fig. 2.2. Composite unidirectionnel dans le sens longitudinal [6].

Dans cette direction où les propriétés sont définies parallèlement aux fibres, la force F est donnée comme suit [6] :

$$F_c = F_m + F_f \quad (2.12)$$

Dans laquelle les indices inférieurs c , m et f représentent respectivement le composite, la matrice et les fibres.

La contrainte normale de traction, ζ_c , du composite s'exprime par la relation suivante [6] :

$$\zeta_1 = \zeta_c = \frac{F_c}{S_c}; \zeta_2 = \zeta_3 = \zeta_4 = \zeta_5 = \zeta_6 = 0 \quad (2.13)$$

Soit :

$$F_c = \zeta_c S_c \quad (2.14)$$

où la quantité S_c désigne la section du composite.

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

La mesure des allongements longitudinaux et transversaux conduit à la détermination des déformations suivantes [2] :

$$\varepsilon_1 = \frac{\Delta L_L}{L_L} \quad ; \quad \varepsilon_2 = \frac{\Delta L_T}{L_T} \quad (2.15)$$

Par conséquent, deux propriétés mécaniques peuvent être calculées [2] :

$$E_L = \frac{\zeta_1}{\varepsilon_1} \quad ; \quad \nu_{LT} = - \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \quad (2.16)$$

La substitution de l'équation (2.14) dans l'équation (2.12), permet de réécrire la force appliquée sur le composite, F_c , en fonction des contraintes ζ_m , ζ_f et des sections droites S_m , S_f de la matrice polymère et des fibres.

$$\zeta_c S_c = \zeta_m S_m + \zeta_f S_f \quad (2.17)$$

Dans ces conditions, la contrainte normale de traction du composite, ζ_c , se déduit comme suit:

$$\zeta_c = \frac{\zeta_m S_m}{S_c} + \frac{\zeta_f S_f}{S_c} \quad (2.18)$$

En admettant que le composite, la matrice et les fibres possèdent la même longueur, et dans le but de réécrire l'expression de la contrainte du composite, ζ_c , en fonction de la fraction volumique, le remplacement des sections par les volumes est possible :

$$\zeta_c = \zeta_m \frac{V_m}{V_c} + \zeta_f \frac{V_f}{V_c} \quad (2.19)$$

où V_c , V_m et V_f représentent respectivement les volumes du composite, de la matrice et des fibres. Sachant que les quantités $\frac{V_m}{V_c}$ et $\frac{V_f}{V_c}$ désignent respectivement les fractions volumiques de la matrice et des fibres, l'équation (2.19) peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\zeta_c = \zeta_m \Phi_m + \zeta_f \Phi_f \quad (2.20)$$

Pour des mélanges compatibles :

$$\Phi_m + \Phi_f = 1 \quad , \quad \text{Soit} \quad \Phi_m = 1 - \Phi_f \quad (2.21)$$

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

Dans ces conditions, la contrainte du composite peut être exprimée en fonction de la fraction volumique des fibres comme suit :

$$\zeta_c = \zeta_m (1 - \Phi_f) + \zeta_f \Phi_f \quad (2.22)$$

Il convient de souligner que le module de Young longitudinal, déterminé par des essais de traction longitudinale, constitue l'un des principaux paramètres influençant les caractéristiques mécaniques des matériaux composites unidirectionnels.

❖ Calcul du module de Young longitudinal

Basé sur l'hypothèse simplificatrice énoncée par Jean-Marie Berthelot [1], la modélisation et le calcul du module de Young longitudinal sont effectués dans cette étude. Cette hypothèse postule que la déformation est uniforme et identique à l'échelle microscopique au sein de la cellule constituée par les fibres, la matrice et le matériau composite. En effet, cette hypothèse facilite l'analyse et les calculs ; néanmoins, elle ne reflète pas nécessairement la distribution réelle des contraintes et des déformations au niveau microscopique. En outre, elle est communément employée dans la modélisation des composites unidirectionnels, en raison de sa simplicité et de son utilisation pratique. Dans cette étude, nous nous intéressons au comportement élastique linéaire des matériaux composites à matrice polymère. Le module de Young, E , de ces matériaux composites appelé aussi le module d'élasticité est une constante reliant la contrainte de traction, ζ , (ou de compression) à la déformation initiale, ε , dans un matériau élastique isotrope [9] et est donné par la loi de Hooke,

$$E_c = \frac{\zeta_c}{\varepsilon_c} \quad (2.23)$$

Dans le sens longitudinal L , la déformation, ε , est uniforme, ce qui permet d'écrire :

$$\varepsilon_c = \varepsilon_m = \varepsilon_f \quad (2.24)$$

La division de l'expression (2.22) par ε , conduit au résultat suivant

$$\frac{\zeta_c}{\varepsilon_c} = \frac{\zeta_m}{\varepsilon_m} (1 - \Phi_f) + \frac{\zeta_f}{\varepsilon_f} \Phi_f \quad (2.25)$$

et l'usage de la loi de Hooke permet d'aboutir à l'expression finale du module d'élasticité du matériau composite [2], [6-8] :

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

$$E_c = E_L = E_m (1 - \Phi_f) + E_f \Phi_f \quad (2.26)$$

Dans laquelle, la grandeur E_L désigne le module d'élasticité longitudinal du matériau composite, tandis que les quantités E_m et E_f représentent respectivement le module d'élasticité de la matrice et des fibres. Compte tenu de ce résultat, il apparaît clairement que le module de Young est linéairement dépendant des modules d'élasticité de la matrice E_m , des fibres E_f et de la fraction volumique du renfort Φ_f [8].

2.2.3. Module de Young transversal du composite unidirectionnel

Considérons un élément de surface du matériau composite unidirectionnel soumis à une force normale, appliquée transversalement aux fibres comme le montre la figure (2.3) [6].

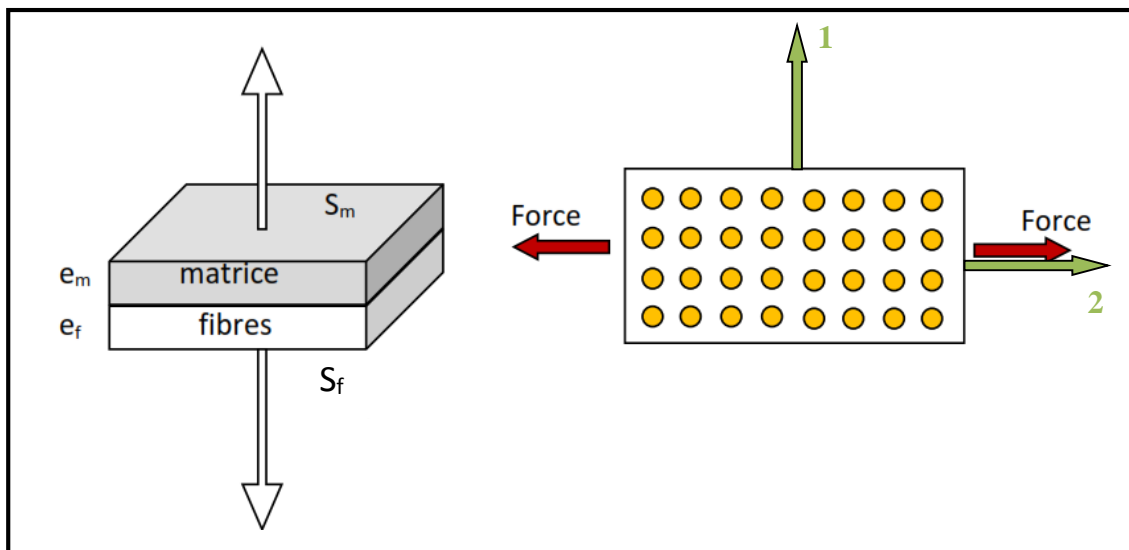


Fig. 2.3. Composite unidirectionnel dans le sens transversal [6].

Dans le cas d'un matériau composite chargé dans la direction transversale, les propriétés mécaniques de ce matériau dans cette direction sont perpendiculaires aux fibres. Ainsi, les forces appliquées sur la matrice et sur les fibres sont égales. Autrement dit, la force exercée sur le matériau composite est identique et elle est perpendiculaire à la force exercée sur les fibres et la matrice :

$$F_c = F_m = F_f \quad (2.27)$$

Par contre, la contrainte normale à la fibre, ζ_c , est donnée par :

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

$$\zeta_2 = \zeta_c = \frac{F_c}{S_c}; \zeta_1 = \zeta_3 = \zeta_4 = \zeta_5 = \zeta_6 = 0 \quad (2.28)$$

D'après l'équation (2.15), la détermination des déformations ε_1 et ε_2 passe impérativement par la mesure des allongements. Cela permet, donc de calculer deux propriétés mécaniques à savoir [2] :

$$E_T = \frac{\zeta_2}{\varepsilon_2} \quad ; \quad \nu_T = - \frac{\varepsilon_3}{\varepsilon_2} \quad (2.29)$$

S'agissant d'un essai de traction dans la direction transversale, le déplacement total du matériau composite, δ_c , s'exprime en fonction des déplacements de la matrice, δ_m , et des fibres, δ_f , comme suit [6] :

$$\delta_c = \delta_m + \delta_f \quad (2.30)$$

Cette expression peut s'exprimer en fonction des déformations et des épaisseurs respectives de la matrice et des fibres :

$$\delta_c = \varepsilon_c e_c = \varepsilon_m e_m + \varepsilon_f e_f \quad (2.31)$$

où e_m et e_f représentent respectivement l'épaisseur de la matrice et des fibres.

$$\varepsilon_c = \varepsilon_m \frac{e_m}{e_c} + \varepsilon_f \frac{e_f}{e_c} \quad (2.32)$$

Dans le sens transversal, les sections normales sont égales ($S_c = S_m = S_f$) lorsque les forces F sont identiques ($F_c = F_m = F_f$), ce qui permet d'écrire :

$$\varepsilon_c = \varepsilon_m \frac{S_m e_m}{S_c e_c} + \varepsilon_f \frac{S_f e_f}{S_c e_c} \quad (2.33)$$

Sachant que :

$$V_c = e_c S_c, V_m = e_m S_m \text{ et } V_f = e_f S_f \quad (2.34)$$

Ainsi, l'équation (2.33) peut être réécrite sous forme :

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

$$\varepsilon_c = \varepsilon_m \frac{V_m}{V_c} + \varepsilon_f \frac{V_f}{V_c} = \varepsilon_m \Phi_m + \varepsilon_f \Phi_f \quad (2.35)$$

Ou encore :

$$\varepsilon_c = \varepsilon_m (1 - \Phi_f) + \varepsilon_f \Phi_f \quad (2.36)$$

❖ Calcul du module de Young transverse

Pour modéliser et calculer de module de Young transversal, nous adoptons une hypothèse simplificatrice proposée par Jean Marie Berthelot [1]. Cette hypothèse suppose une force (contrainte) uniforme et appliquée transversalement aux fibres [6]. D'après la loi de Hooke, qui s'applique aussi dans le sens transversal, l'équation (2.22) s'écrit alors :

$$\frac{\zeta_c}{E_c} = \frac{\zeta_m}{E_m} (1 - \Phi_f) + \frac{\zeta_f}{E_f} \Phi_f \quad (2.37)$$

D'autre part, dans le sens transversal (T), la contrainte, ζ , est uniforme ($\zeta_c = \zeta_f = \zeta_m$), le module d'élasticité transverse est donnée par l'expression suivante [2], [6-7] :

$$\frac{1}{E_c} = \frac{1}{E_T} = \frac{1}{E_m} (1 - \Phi_f) + \frac{1}{E_f} \Phi_f \quad (2.38)$$

ou encore :

$$E_T = \frac{E_m E_f}{E_m \Phi_f + E_f (1 - \Phi_f)} \quad (2.39)$$

Dans laquelle, E_T , E_m et E_f représentent respectivement le module de Young transverse du matériau composite, le module de Young de la matrice et celui des fibres.

2.3. Résultats et Discussions

Comme il a été évoqué précédemment, l'objectif de cette étude consiste à améliorer les propriétés mécaniques du polyéthylène de haute densité (PEHD), en le combinant avec des renforts telles que les fibres de Bore et du Kevlar 49. Pour ce faire, sur le tableau 2.1, nous avons regroupé les valeurs de la masse volumique et du module de Young de la matrice et des fibres. Les résultats des essais de traction de la matrice et des fibres utilisées, y compris la contrainte et la déformation à la rupture, sont donnés dans ce tableau [6-9].

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

Matrice et renfort ↓	Masse volumique (kg/m ³)	Contrainte à la rupture (MPa)	Déformation à la rupture (%)	Module de Young (MPa)
Polyéthylène de haute densité (PEHD)	950-970	10-40	200-400	200-400
Kevlar49	1450	2900	2.3	130000
Bore (B)	2600	3400	0.8	400000

Tableau 2.1. Caractéristiques mécaniques de la matrice et des fibres utilisées [2], [9-14].

Dans ce qui va suivre, nous allons examiner en détail l'impact de la nature de la fibre et de sa fraction volumique sur le module d'Young longitudinal et transversal ainsi que sur la contrainte et la déformation à la rupture de deux matériaux composites à savoir le polyéthylène de haute densité/ Bore (PEHD/B) et le polyéthylène de haute densité/ Kevlar 49 (PEHD/Kevlar 49).

2.3.1. Impact de la fraction volumique et la nature de la fibre sur la masse volumique des deux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49)

Pour appréhender de tels systèmes, nous concentrons particulièrement notre attention sur l'influence de la nature de la fibre et de sa fraction volumique sur la masse volumique des deux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49). Pour cela, nous avons représenté sur la figure 2.4 l'évolution des masses volumiques des deux composites sus-évoqués en fonction de la fraction volumique de la fibre, selon les équations suivantes :

$$\mu_{(PEHD/B)} = \mu_{PEHD} (1 - \Phi_f) + \mu_B \Phi_f \quad (2.40)$$

$$\mu_{(PEHD/Kevlar\ 49)} = \mu_{PEHD} (1 - \Phi_f) + \mu_{Kevlar\ 49} \Phi_f \quad (2.41)$$

A la lumière de la figure 2.4, il apparaît un accroissement substantiel de la masse volumique des deux composites considérés à mesure que la fraction volumique de la fibre augmente. Cette tendance est cohérente avec la loi de mélange des densités, où la masse volumique du composite est déterminée par la contribution relative de la matrice polymère et de la fibre.

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

Cette courbe exprime une relation directe entre la composition microscopique du matériau et sa propriété macroscopique (masse volumique). Elle illustre aussi l'un des grands avantages des composites : la possibilité de personnaliser les propriétés du matériau final en ajustant la fraction volumique des constituants.

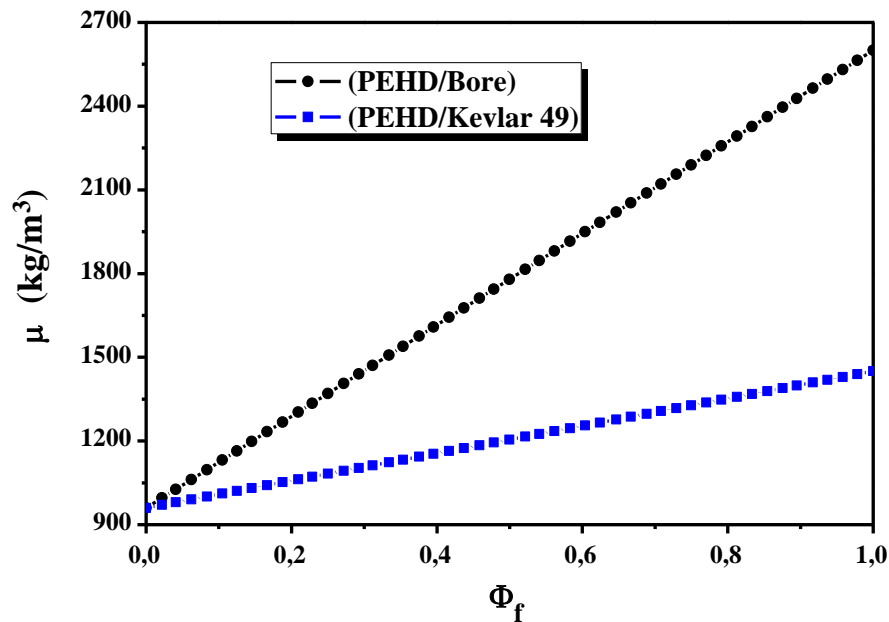


Fig. 2.4. Variations de la masse volumique, μ , des composites (PEHD/Bore), (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumétrique de la fibre Φ_f .

Il convient de noter que l'augmentation de la masse volumique est plus significative pour le composite (PEHD/Bore) que pour le composite (PEHD/Kevlar 49). Cette différence est due principalement à la masse volumique plus élevée du Bore (environ 2600 kg/m^3) par rapport à celle du Kevlar 49 (environ 1450 kg/m^3). Par conséquent, à mesure que la proportion volumique de la fibre croît, la densité globale du composite se rapproche de celle du renfort, un phénomène plus marqué dans le cas du Bore.

En outre, cette différence de l'augmentation des masses volumiques peut influencer d'autres propriétés des composites, telles que leur comportement mécanique et leur aptitude à certaines applications. Ainsi, un composite plus dense, comme le (PEHD/Bore), pourrait offrir une meilleure résistance à la compression et une rigidité accrue, mais au prix d'un poids plus élevé. En revanche, le composite (PEHD/Kevlar 49), plus léger, pourrait s'avérer plus avantageux dans des applications requérant un équilibre entre résistance mécanique et faible densité, comme

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

dans le secteur aéronautique ou la fabrication d'équipements de protection. Ces résultats soulignent l'importance cruciale du choix judicieux du renfort, en tenant compte des exigences spécifiques de l'application envisagée, et en évaluant non seulement les propriétés mécaniques, mais également les implications sur le poids et la performance globale du système.

2.3.2. Impact de la fraction volumique et de la nature de la fibre sur le module de Young longitudinal des composites : (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49)

Afin de mettre en évidence l'influence de la fraction volumique et de la nature de la fibre sur le comportement du module d'Young longitudinal des composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49), les lois de variation de cette grandeur physique peuvent s'écrire comme suit :

$$E_{L(PEHD/B)} = E_{PEHD} (1 - \Phi_f) + E_B \Phi_f \quad (2.42)$$

$$E_{L(PEHD/Kevlar\ 49)} = E_{PEHD} (1 - \Phi_f) + E_{Kevlar\ 49} \Phi_f \quad (2.43)$$

Sur la figure 2.5, nous avons représenté les variations des modules d'Young longitudinaux des deux composites (PEHD/Bore) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique du renfort. L'analyse de cette figure met en évidence une augmentation proportionnelle du module d'Young longitudinal des composites avec la fraction volumique de la fibre. En effet, la figure montre, d'une part, que les modules longitudinaux des deux matériaux composites suivent un accroissement linéaire avec l'augmentation de la fraction volumique de la fibre. Cette observation est en accord avec les prédictions des modèles théoriques de mélange de phases. D'autre part, une analyse plus approfondie montre que les deux composites se comportent différemment. Le module d'Young longitudinal du composite (PEHD/Bore) augmente plus vite que celui du composite (PEHD/Kevlar 49). Cela s'explique par le fait que les fibres de Bore sont plus rigides que celles de Kevlar 49. En revanche, le composite avec du Kevlar 49 fait apparaître une augmentation plus modérée du module d'Young avec la quantité des fibres. Cela vient sûrement du fait que les fibres de Kevlar sont plus souples, même si elles renforcent la structure du composite autant que les fibres de Bore. Cela signifie que le composite devient plus rigide dans la direction des fibres.

Ces résultats montrent qu'il est très important de bien choisir le renfort pour optimiser les propriétés mécaniques des composites, selon l'utilisation prévue. Pour une grande rigidité et une résistance aux déformations, le renfort rigide Bore est préférable. Pour une meilleure capacité d'absorption des chocs et une certaine flexibilité, le Kevlar 49 pourrait être plus adapté.

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

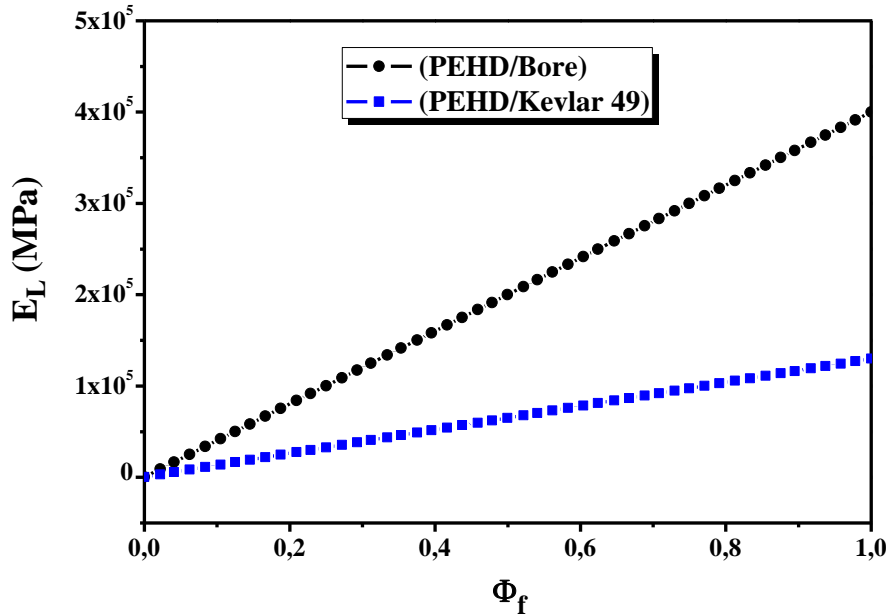


Fig. 2.5. Variations du module d'Young longitudinal, E_L , des composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49), en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f .

2.3.3. Impact de la fraction volumique et de la nature de la fibre sur le module transversal des deux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49)

Pour illustrer de plus près l'influence de la nature de la fibre sur la dépendance du module de Young transversal, nous avons représenté sur la figure 2.6, les variations de la quantité E_T des deux matériaux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique Φ_f . En effet, le module d'élasticité transverse de ces deux matériaux composites est donné par les relations suivantes :

$$E_{T(PEHD/B)} = \frac{E_{PEHD}E_B}{E_{PEHD}\Phi_f + E_B(1 - \Phi_f)} \quad (2.44)$$

$$E_{T(PEHD/Kevlar\ 49)} = \frac{E_{PEHD}E_{Kevlar\ 49}}{E_{PEHD}\Phi_f + E_{Kevlar\ 49}(1 - \Phi_f)} \quad (2.45)$$

La figure 2.6 fait apparaître un comportement totalement différent à celui obtenu sur la figure 2.5, décrivant les variations du module de Young longitudinal, E_L , en fonction de la quantité Φ_f . Cela n'est surprenant en ce sens que le module de Young longitudinal et le module de Young transversal, bien que tous servent à mesurer la rigidité d'un matériau, diffèrent en raison de la manière dont la déformation est mesurée et de la direction des forces appliquées. L'analyse de la figure 2.6 révèle un comportement quasi-similaire des deux matériaux composites

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

(PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) dans la totalité du domaine de la fraction volumique des fibres. Une légère différence entre le module d'élasticité transversal de ces deux matériaux apparaît lorsque la quantité Φ_f dépasse la valeur de 0.75 comme l'indique la figure insérée. En outre, cette figure montre que les modules d'élasticité dans la direction transversale des deux composites varient de manière non linéaire avec l'augmentation de la fraction volumique des fibres. On observe aussi que le module d'élasticité transverse du composite (PEHD/B) augmente plus ou moins vite que celui du composite (PEHD/Kevlar 49) quand la fraction volumique dépasse la valeur 0,8. Cela signifie que la nature de la fibre n'a pas un impact important sur le module de Young transversal contrairement à celui longitudinal. Cela signifie que le composite reste beaucoup plus faible transversalement, car les fibres ne participent pas efficacement au soutien mécanique dans cette direction.

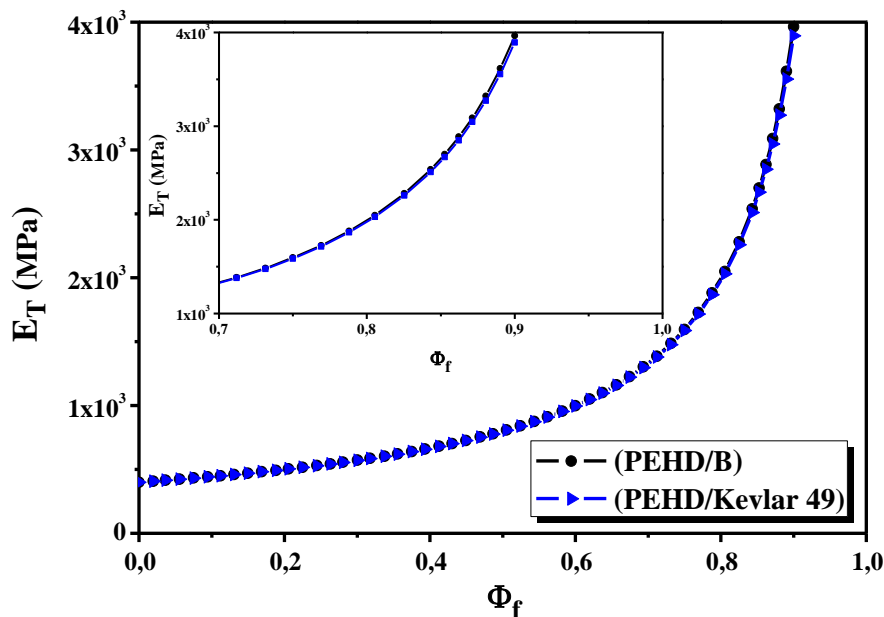


Fig. 2.6. Variations du module d'Young transversal, E_T , des matériaux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f .

S'agissant de l'effet de la fraction volumique des fibres, nos résultats montrent que les modules d'élasticité transversaux des deux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) ont tendance à croître avec l'augmentation de la fraction volumique. En effet, plus la quantité de fibres est grande, plus le module d'élasticité transversal est important. En résumé, l'ajout des fibres solides améliore les performances mécaniques du matériau composite.

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

2.3.4. Impact la fraction volumique et de la nature de la fibre sur la contrainte à la rupture des composites (PEHD/B) et (PEHD/ Kevlar 49)

Pour illustrer l'influence de la nature de la fibre sur la contrainte à la rupture, qui représente la contrainte maximale qu'un matériau peut supporter avant de se rompre ou de se fracturer, des deux matériaux composites (PEHD/Bore) et (PEHD/Kevlar 49), nous avons mis en évidence, sur la figure 2.7, les variations de la quantité ζ donnée par les relations suivantes :

$$\zeta_{(PEHD/B)} = \zeta_{PEHD} (1 - \Phi_f) + \zeta_B \Phi_f \quad (2.46)$$

$$\zeta_{(PEHD/Kevlar\ 49)} = \zeta_{PEHD} (1 - \Phi_f) + \zeta_{Kevlar\ 49} \Phi_f \quad (2.47)$$

Comme prévu, les résultats obtenus sont assez similaires à ceux de la figure 2.5, ce qui montre que la contrainte à la rupture augmente avec la quantité des fibres. En revanche, la contrainte à la rupture du composite (PEHD/B) est bien plus forte que celle du composite (PEHD/Kevlar 49). Cela s'explique par le fait que les fibres de Bore sont plus résistantes que celles de Kevlar 49. Donc, plus on augmente la quantité des fibres de Bore, plus la rupture du composite (PEHD/B) est rapide. Nos résultats montrent aussi que l'orientation des fibres a un effet important sur la résistance des matériaux à la rupture. Quand les fibres sont bien alignées dans la direction où le matériau est soumis à une tension, il devient plus résistant. Cet effet est particulièrement fort pour les matériaux composites renforcés par des fibres à haute performance mécanique, comme celles à base de Bore.

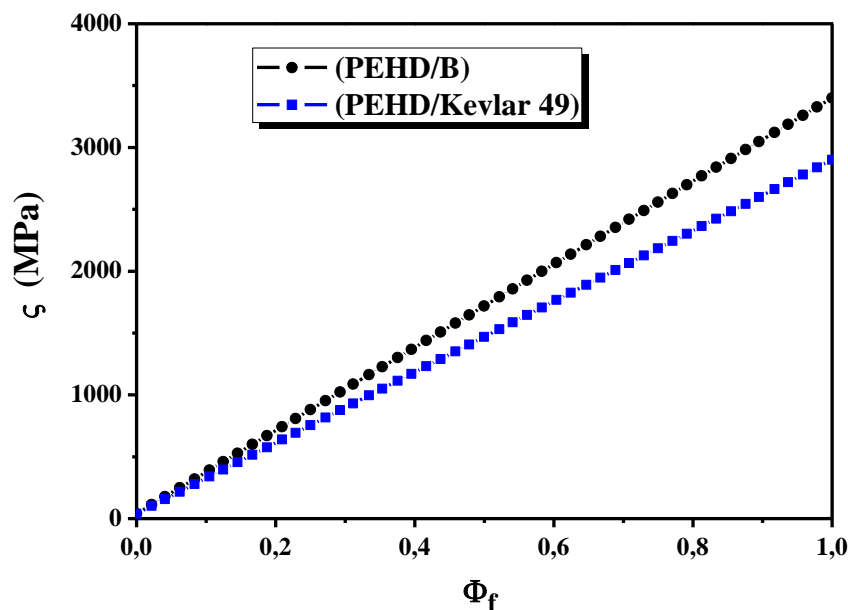


Fig. 2.7. Variations de la contrainte à la rupture, ζ , des composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f .

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

2.3.5. Impact de la nature de la fibre et de sa fraction volumique sur la déformation à la rupture des deux matériaux composites (PEHD/Bore) et (PEHD/Kevlar 49)

Une dernière grandeur physique traitée dans le présent travail est celle de la déformation des matériaux composites (PEHD/B) et (PEHD/Kevlar 49), où nous avons étudié l'influence du type de la fibre et sa fraction volumique sur cette grandeur ε qui s'exprime pour les deux matériaux composites comme suit :

$$\varepsilon_{(PEHD/B)} = \varepsilon_{PEHD} (1 - \Phi_f) + \varepsilon_B \Phi_f \quad (2.48)$$

$$\varepsilon_{(PEHD/Kevlar\ 49)} = \varepsilon_{PEHD} (1 - \Phi_f) + \varepsilon_{Kevlar\ 49} \Phi_f \quad (2.49)$$

La figure 2.8 illustre la variation de la déformation à la rupture des deux matériaux composites (PEHD/Bore) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique du renfort. Cette figure met en évidence une diminution linéaire de la déformation à la rupture des deux composites à mesure que la fraction volumique des fibres augmente. Cette observation met en exergue la nécessité d'un contrôle rigoureux de la fraction volumique des fibres pour minimiser la déformation dans les matériaux composites et optimiser leurs performances mécaniques.

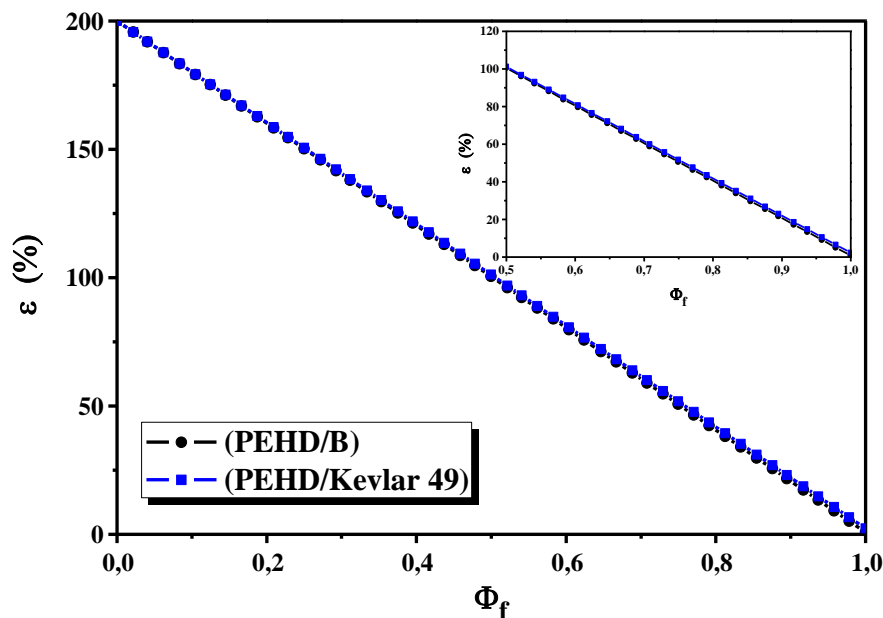


Fig. 2.8. Variations de la déformation à la rupture, ε , des composites (PEHD/Bore) et (PEHD/Kevlar 49) en fonction de la fraction volumique de la fibre Φ_f .

L'intervalle de variation de la fraction volumique du renfort, qui s'étend de 0 à 1 pour les deux matériaux composites unidirectionnels, a été sélectionné de manière à permettre une analyse

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

complète de l'évolution de la déformation. Il a été constaté que la déformation du composite (PEHD/B) diminue plus rapidement que celle du composite (PEHD/Kevlar 49). Cette différence devient particulièrement notable dans la plage de 0,8 à 1 de fraction volumique des fibres.

Ces observations mettent en évidence l'impact significatif du type de fibre et de sa fraction volumique sur la résistance mécanique du matériau composite. En outre, il est constaté que l'orientation des fibres exerce une influence déterminante sur la résistance à la traction, influant de manière directe sur les propriétés mécaniques du composite. Ainsi, en sélectionnant une plage de variation appropriée, il est possible d'évaluer et de comparer avec précision les performances des différents matériaux composites étudiés.

2.4. Conclusion

L'objectif principal de ce travail était d'étudier les propriétés mécaniques des matériaux composites à matrice polymère, en particulier les composites (PEHD/Bore) et (PEHD/Kevlar 49). Notre analyse s'est focalisée sur l'impact de la fraction volumique des fibres sur des paramètres essentiels tels que le module d'Young longitudinal et transversal, la contrainte et la déformation à la rupture.

Les résultats de cette étude révèlent que l'augmentation de la fraction volumique des fibres conduit, d'une part, à un accroissement de la masse volumique, de la contrainte à la rupture et des modules de Young longitudinal et transversal et d'autre part, à une diminution de la déformation à la rupture. Cela signifie que le composite devient plus rigide dans la direction des fibres et reste beaucoup plus faible transversalement, puisque les fibres ne participent pas efficacement au soutien mécanique dans cette direction. En outre, il a été constaté que le matériau composite (PEHD/B) présente des propriétés mécaniques supérieures à celles du (PEHD/Kevlar 49), en raison de la rigidité supérieure des fibres de Bore.

En bref, ce travail représente une avancée frappante dans le domaine des matériaux composites avancés. Il met en évidence les liens complexes entre la composition des matériaux et leurs performances mécaniques, tout en proposant une méthodologie analytique rigoureuse qui peut être transposée à d'autres systèmes composites. Les principaux résultats obtenus dans le cadre de cette étude ouvrent la voie à de nouvelles recherches et innovations, renforçant ainsi le potentiel des matériaux composites dans de nombreuses applications industrielles.

Chapitre 2. Analyse du comportement mécanique d'un composite élastique à matrice polymère en polyéthylène renforcé par des fibres de Bore et de Kevlar 49

2.5. Références

- [1] J. M. Berthelot, "Matériaux composites (5 Éd.) : Comportement mécanique et analyse des structures", Lavoisier, Paris, 2012.
- [2] S. Belhenini, "Matériaux Composites Notes de cours", chapter, Université de Aïn Temouchent, 2023.
- [3] Composites thermoplastiques renforcés de fibres continues : Robuste, Léger, Résistance à la corrosion, Liberté de conception.
<https://fr.topolocfrt.com/composites-thermoplastiques-renforces-de-fibres-continues/>
- [4] M. Dequatremare, T. Devers, "Précis des matériaux", Dunod, Paris, 2012.
- [5] D. K. Y. Tam, S. Ruan, P. Gao, T. Yu, "10-High-performance ballistic protection using polymer nanocomposites" *Advances in Military Textiles and Personal Equipment* **2012**, 213-237.
- [6] T. Outtas, "Introduction à l'élasticité des composites–loi des mélanges", CompMec des Matériaux composites M1– GM - Chap II, Université Batna 2, Algérie.
- [7] A. Chateauminois, "Cours matériaux composites : Propriétés élastiques du Pli unidirectionnel approche micromécanique", Fiche 2 Mai 2000.
- [8] M. K. Egbo, "A fundamental review of composite materials and some of their applications in biomedical engineering" *Journal of King Saud University-Engineering Sciences* **2012**, 33, 525-604.
- [9] C. Aribi, "Etude comparative du comportement des différents matériaux composites (différentes matrices), *Mémoire de Magister*, Université de Boumerdes, Algérie, 2012.
- [10] S. Yebdri, "Etude des propriétés élastique et plastique des films à base de polyéthylène base densité", *Mémoire de Magister*, Université de Médéa, Algérie, 2006.
- [11] D. Gay, "Matériaux Composites : leur intérêt, leurs propriété physiques", 4ème édition revue et augmenté, Lavoisier, Paris 2012.
- [12] H. Rachedi, "Etude des mécanismes de rupture du polyéthylène", *Mémoire de Master*, Université de Badji Mokhtar Annaba, Algérie, 2019.
- [13] S. A. Chalal, "Etude des propriétés mécaniques d'un composite, PEBD à base d'une charge en céramique modifiée", *Mémoire de Master*, Université de Boumerdes, Algérie, 2017.
- [14] N. Haddad, "Caractérisation mécanique et thermique du polymère PEHD100", *Mémoire de Magister*, Université de Guelma, Algérie, 2012.

CHAPITRE 3

**Contribution à l'Analyse du
Comportement Thermique des
Composites Polymères : Cas
des Composites
Polyéthylènes/Diborure de
Titane (PE/TiB₂)**

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

3.1. Introduction

Les matériaux composites occupent une place prépondérante dans divers secteurs du transport, notamment l'aéronautique, l'automobile et le domaine maritime, en raison de leurs avantages économiques et environnementaux. Leur légèreté, en particulier, constitue un atout majeur pour les structures nécessitant une réduction de masse. Toutefois, ces matériaux présentent certaines limitations fonctionnelles par rapport aux métaux, qui se distinguent non seulement par leur haute limite élastique, mais également par leur capacité à offrir une protection efficace contre la foudre, les ondes électromagnétiques et d'autres agressions extérieures.

L'intégration de nouvelles fonctionnalités dans les matériaux composites représente une voie prometteuse pour étendre leur champ d'application, notamment dans des domaines à haute exigence technologique tels que l'aéronautique et le secteur naval [1]. Cette démarche s'inscrit dans un effort de développement de nouveaux composites associant des matrices polymères à des charges fonctionnelles, telles que le diborure de titane (TiB₂). Dans ce contexte, la présente étude vise à contribuer à l'intégration de fonctionnalités thermiques dans les composites, en explorant l'amélioration de leur conductivité thermique par l'incorporation de diborure de titane (TiB₂) dans une matrice de polyéthylène (PE). L'objectif est d'obtenir cette amélioration sans altérer de manière significative le comportement thermique global du composite.

Il convient de souligner que la conductivité thermique des matériaux composites à matrice polymère constitue un domaine de recherche majeur, tant sur le plan théorique qu'expérimental. Ces dernières années, les études se sont concentrées sur les mécanismes de transfert thermique dans ces matériaux, les modèles de prédiction disponibles, ainsi que leurs implications pour la conception de structures à haute performance [2]. Parmi les polymères les plus étudiés dans ce contexte figure le polyéthylène, le plastique le plus utilisé au monde. Ce matériau, apprécié pour sa polyvalence, est largement employé dans les secteurs de l'emballage, de la construction, de l'automobile et du bâtiment [3–6]. Concernant les charges thermo-conductrices, le diborure de titane (TiB₂) émerge comme un renfort de choix. Ce matériau céramique avancé est prisé pour ses propriétés remarquables : dureté élevée, excellente conductivité thermique et électrique, résistance à haute température et faible densité [7–10]. Ces caractéristiques en font un candidat idéal pour des applications dans l'aéronautique, où il permet d'améliorer les propriétés mécaniques, thermiques et électriques des composites [11], [12].

Les composites polymères renforcés, tels que (PEHD/TiB₂), (PEDM/TiB₂) ou encore

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

(PEBD/TiB₂), suscitent ainsi un intérêt croissant dans divers secteurs industriels, en particulier l'automobile et la construction [13]. Par exemple, les composites à base de PEDM renforcé améliorent la résistance à la corrosion des tuyauteries, tandis que les composites à base de PEHD recyclé combiné à des fibres naturelles permettent de produire des matériaux de construction écologiques [14]. Dans le secteur aérospatial, le développement de composites à matrice de PEHD contenant des particules céramiques (comme la zircone ou l'alumine) ouvre la voie à des applications exigeant à la fois légèreté et performance [15–19]. La compréhension fine du comportement thermique de ces matériaux repose sur une caractérisation rigoureuse de leurs paramètres structuraux, physiques et thermiques, condition essentielle à des prédictions fiables de leurs performances [20].

Cette étude vise à analyser l'impact de l'interface des particules de TiB₂ sur la conductivité thermique des composites. Pour cela, un modèle théorique prenant en compte des interfaces parfaites et imparfaites a été retenu. L'effet de la forme des particules, sphériques ou cylindriques, a également été évalué. Une comparaison a ensuite été menée afin d'identifier la configuration la plus favorable à l'amélioration de la conductivité thermique sans compromettre les propriétés mécaniques et thermiques du matériau.

3.2. Modèles théoriques utilisés

La conductivité thermique constitue un paramètre clé dans l'optimisation des performances thermiques des matériaux utilisés dans des secteurs tels que l'aéronautique, l'électronique ou le bâtiment. Les composites à matrice polymère, naturellement isolants, peuvent voir leur conductivité thermique améliorée par l'intégration de renforts thermo-conducteurs tels que le TiB₂ ou les nanotubes de carbone. En raison de leur structure hétérogène, ces matériaux présentent une conductivité thermique localement variable, rendant leur étude plus complexe que celle des matériaux homogènes. Ces dernières années, de nombreux travaux se sont penchés sur ce sujet, en s'appuyant sur des modèles théoriques et semi-empiriques pour analyser l'influence des composants sur le comportement thermique global des composites [21].

Compte tenu de l'objectif que nous nous sommes assigné, dans ce qui va suivre, nous allons examiner des modèles théoriques et semi-empiriques qui permettent une compréhension plus approfondie du comportement thermique des matériaux composites.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

3.2.1. Modèle de Hashin et Shtrikman

Dans un premier temps, nous allons utiliser le modèle de Hashin et Shtrikman pour évaluer la conductivité thermique des matériaux composites dans des conditions d'interface parfaites. Dans ce modèle, Hashin et Shtrikman supposent que la conductivité thermique du renfort, λ_r , est supérieure à celle de la matrice, λ_m . Partant de cette hypothèse, les auteurs expriment la conductivité thermique effective des composites à matrice polymère en considérant la configuration géométrique illustrée par la figure 3.1, comme suit [22-24] :

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_m \frac{1 + (d - 1)\Phi_r\beta}{1 - \Phi_r\beta} \quad (3.1)$$

avec

$$\beta = \lambda_m \frac{\lambda_r - \lambda_m}{\lambda_r + (d - 1)\lambda_m} \quad (3.2)$$

et

$$d = \frac{\frac{1}{x} + \frac{1}{y} + \frac{1}{z}}{\frac{1}{x}} \quad (3.3)$$

d est un paramètre qui représente la dimension du système et définit la forme des charges. Dans le cas d'une dispersion sphérique ($x = y = z$) $d = 3$; et pour les cylindres $d = 2$.

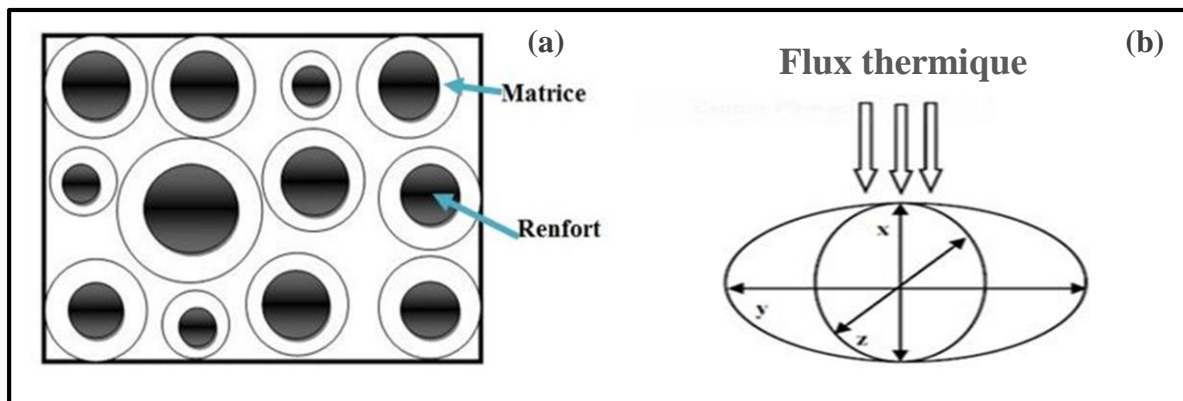


Fig. 3.1. Assemblage de sphères ou de cylindres dans un composite, selon le modèle de Hashin et Shtrikman pour $\lambda_r > \lambda_m$ (a) [25]. Propagation du flux thermique dans le cas d'une ellipse (b) [2].

3.2.2. Modèle de Hasselman et Johnson

Dans la deuxième partie de cette étude, nous allons utiliser le modèle de Hasselman et Johnson [26] pour déterminer la conductivité thermique des composites dans le cas d'une interface

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

imparfaite. Ce modèle permet de calculer la conductivité thermique effective du composite en tenant compte des interactions à l'interface particules-matrice. Il reste valable pour des faibles fractions volumiques et il a été développé pour deux configurations différentes :

- ❖ Distribution de particules sphériques.
- ❖ Dispersion de particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux thermique.

3.2.2.1. Cas de la dispersion des particules sphériques

Dans le cas où les particules sphériques sont dispersées de manière homogène, la conductivité thermique effective du composite est exprimée comme suit [26] :

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_m \frac{2 \left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_r}{ah_c} \right) \Phi_2 + \frac{2\lambda_r}{ah_c} + \lambda + 2}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_r}{ah_c} \right) \Phi_2 + \frac{2\lambda_r}{ah_c} + \lambda + 2} \quad (3.4)$$

où les quantités a , h_c et $\lambda = \frac{\lambda_r}{\lambda_m}$ représentent respectivement le rayon des sphères, la conductance de l'interface entre les particules et la matrice et le rapport entre la conductivité thermique du renfort et celle de la matrice.

3.2.2.2 Cas des particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur

Le développement de ce modèle, qui définit la conductivité thermique effective du composite, suit une approche de type Rayleigh. Le fait de supposer une interface parfaite où la résistance thermique, R_c , tend vers 0 (indiquant que la conductance, h_c , tend vers l'infini), permet ainsi de retrouver l'équation de Rayleigh. Dans ce modèle, les cylindres de rayon 'a' sont dispersés, et la conductivité thermique effective du composite est définie par l'équation suivante [26] :

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_m \frac{\left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_r}{ah_c} \right) \Phi_r + \frac{\lambda_r}{ah_c} + \lambda + 1}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_r}{ah_c} \right) \Phi_r + \frac{\lambda_r}{ah_c} + \lambda + 1} \quad (3.5)$$

Ainsi, la conductivité thermique effective, selon le modèle de Rayleigh, est exprimée comme suit :

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_m \frac{(\lambda - 1)\Phi_r + 1 + \lambda}{(1 - \lambda)\Phi_r + 1 + \lambda} \quad (3.6)$$

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

Les valeurs de la conductivité thermique de la matrice et du renfort, indiquant la capacité du matériau à conduire la chaleur, sont regroupées dans le tableau 3.1. La connaissance de ces valeurs est essentielle pour calculer la conductivité thermique effective du composite considéré. Effectivement, les différentes matrices utilisées dans le présent travail (le PEHD, le PEDM et le PEBD) ont des conductivités thermiques différentes, ce qui affecte les propriétés thermiques du composite [27-29].

Matrices et renforts	Conductivité thermique λ(W.m⁻¹.K⁻¹)
PEHD	0.463
PEDM	0.400
PEBD	0.398
TiB₂	64

Tableau 3.1. Valeurs de la conductivité thermique des matrices et du renfort utilisés [27-29].

Il convient de noter que, dans le modèle de Hasselman et Johnson [26] et plus précisément dans le cas des particules sphériques, certains paramètres influencent la conductivité thermique, tels que :

- ❖ Le rayon des particules sphériques : Ce paramètre donne une information sur la taille des particules de renfort sphériques utilisées dans l'étude. Il est important puisque la taille des particules peut affecter la conductivité thermique du composite ; en effet, la valeur du rayon des particules sphériques est de $2 \cdot 10^{-6}$ (m) [30].
- ❖ La conductance de l'interface : Cette quantité représente la conductance de l'interface entre les particules de renfort et la matrice. Elle permet de comprendre comment la chaleur se propage à travers l'interface entre les particules et la matrice et est égale à 10^5 (W/m².K) [30]. Une conductance plus élevée signifie une meilleure transmission thermique.

En résumé, la connaissance de ces grandeurs physiques est essentielle pour calculer la conductivité thermique effective des composites. Elles permettent de prendre en considération les propriétés de chaque composant du composite, y compris le renfort TiB₂ et la matrice en polyéthylène (PEHD, PEDM, PEBD), ainsi que les propriétés des particules et de leur interface. La combinaison de ces données est essentielle pour l'analyse thermique des composites.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

3.3. Résultats et discussions

3.3.1. Cas d'une interface parfaite

Dans un premier temps, nous utiliserons le modèle de Hashin et Shtrikman pour déterminer la conductivité thermique en supposant une interface parfaite entre les particules de renfort, quelle que soit leur forme sphérique ou cylindrique. Ainsi, nous examinerons, dans cette étude, l'impact de l'interface des particules de renfort en diborure de titane (TiB₂) sur la conductivité thermique effective de trois matériaux composites distincts, à savoir (PEHD/ TiB₂), (PEDM/ TiB₂), et (PEBD/ TiB₂).

3.3.1.1. Matériau composite (PEHD/ TiB₂)

❖ Cas des particules sphériques

Dans ce cas, nous déterminerons la loi de variation de la conductivité thermique du composite (PEHD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique de renfort (TiB₂) pour les particules sphériques.

$$\lambda_{\text{eff(PEHD/TiB}_2\text{) parfaite (d=3)}} = \lambda_{\text{PEHD}} \frac{1 + (d - 1)\Phi_{\text{TiB}_2} \beta}{1 - \Phi_{\text{TiB}_2} \beta} \quad (3.7)$$

La loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort est donnée par la relation suivante :

$$\lambda_{\text{eff(PEHD/TiB}_2\text{) parfaite (d=3)}} = 0.463 \frac{1 + 1.957212827 \Phi_{\text{TiB}_2}}{1 - 0.9786064135 \Phi_{\text{TiB}_2}} \quad (3.8)$$

L'évolution de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort pour des particules sphériques est présentée sur la figure 3.2. L'analyse de cette figure montre clairement que l'augmentation de la fraction volumique de TiB₂ entraîne systématiquement une augmentation de la conductivité thermique du composite (PEHD/ TiB₂). Cette amélioration est d'autant plus marquée que la fraction volumique du renfort est élevée, car les particules de TiB₂ conductrices forment des chemins préférentiels facilitant le transfert de chaleur. Toutefois, cette évolution peut dépendre de plusieurs facteurs, notamment la nature et la forme du renfort, la distribution des particules dans la matrice, ainsi que l'interface matrice/ renfort. Au-delà d'un certain seuil de fraction volumique, un réseau continu de renforts peut se former (effet de percolation), entraînant une hausse significative de la conductivité thermique.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

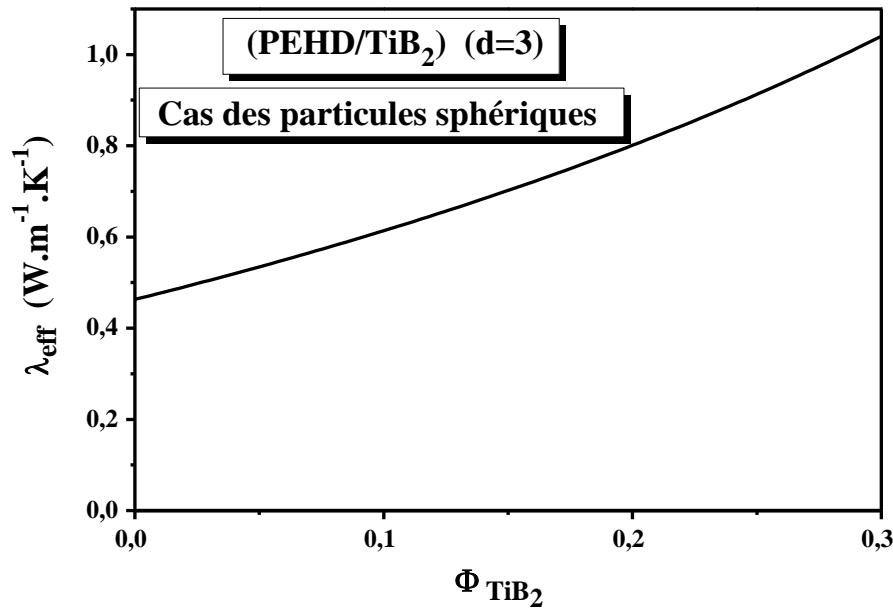


Fig. 3.2. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB₂), $\lambda_{eff}(PEHD/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface parfaite.

❖ *Cas des particules cylindriques*

Pour des particules cylindriques, le modèle de Hashin et Shtrikman permet d'établir la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort TiB₂ tel que :

$$\lambda_{eff(PEHD /TiB_2)parfaite (d=2)} = \lambda_{PEHD} \frac{1 + (d - 1)\Phi_{TiB_2} \beta}{1 - \Phi_{TiB_2} \beta} \quad (3.9)$$

La conductivité thermique de la matrice PEHD est égale à $\lambda_{HDPE} = 0,463$ W/m.K [27-29].

La substitution de cette dernière valeur dans l'équation (3.9) permet d'établir la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort :

$$\lambda_{eff(PEHD /TiB_2)parfaite(d=2)} = 0.463 \frac{1 + 0.9856351706 \Phi_{TiB_2}}{1 - 0.9856351706 \Phi_{TiB_2}} \quad (3.10)$$

La figure 3.3 illustre la variation de la conductivité thermique du composite (PEHD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort TiB₂ pour des particules de forme cylindrique. La figure ainsi obtenue montre un comportement qualitativement similaire à celui observé dans le cas des particules sphériques, où la conductivité thermique, λ_{eff} , augmente de manière significative à mesure que la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , augmente.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

A la lumière de cette figure il apparaît que, la géométrie des particules de renfort constitue un facteur clé dans l'amélioration de la conductivité thermique des matériaux composites. En effet, la forme des particules influence directement la formation et la continuité des chemins thermiques au sein de la matrice. Effectivement, les particules cylindriques ou allongées, en comparaison avec les particules sphériques, offrent une plus grande surface de contact et une meilleure connectivité, ce qui favorise un transfert de chaleur plus efficace. Cependant, cette amélioration dépend fortement de leur orientation et de leur dispersion dans la matrice. Dans notre cas, les particules sphériques présentent une conductivité thermique plus élevée, en raison de leur distribution plus homogène et de leur comportement isotrope, qui favorise un transfert de chaleur plus uniforme. De plus, certaines géométries peuvent réduire l'espacement entre les particules et faciliter la percolation thermique à des fractions volumiques plus faibles. Ainsi, le choix judicieux de la géométrie des particules de renfort permet d'optimiser les performances thermiques du composite.

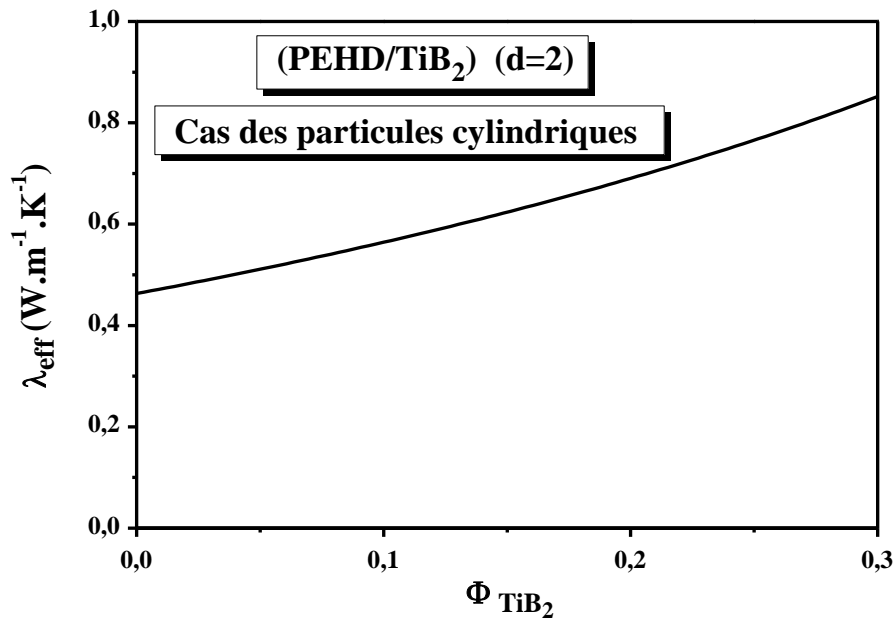


Fig. 3.3. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB₂), $\lambda_{eff}(PEHD/TiB_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface parfaite.

3.3.1.2. Matériau composite (PEDM/ TiB₂)

❖ Cas des particules sphériques

Dans le cas des particules sphériques, l'expression de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/ TiB₂), en fonction de la fraction volumique du renfort TiB₂, est donnée par :

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

$$\lambda_{\text{eff}}(\text{PEDM}/\text{TiB}_2)_{\text{parfaite}}(d=3) = \lambda_{\text{PEDM}} \frac{1 + (d-1)\Phi_{\text{TiB}_2}\beta}{1 - \Phi_{\text{TiB}_2}\beta} \quad (3.11)$$

Connaissant la valeur de la conductivité thermique de la matrice PEDM, λ_{PEDM} , la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/ TiB₂) en fonction de la quantité Φ_{TiB_2} , est la suivante :

$$\lambda_{\text{eff}}(\text{PEDM}/\text{TiB}_2)_{\text{parfaite}}(d=3) = 0.40 \frac{1 + 1.962962963 \Phi_{\text{TiB}_2}}{1 - 0.9814814815 \Phi_{\text{TiB}_2}} \quad (3.12)$$

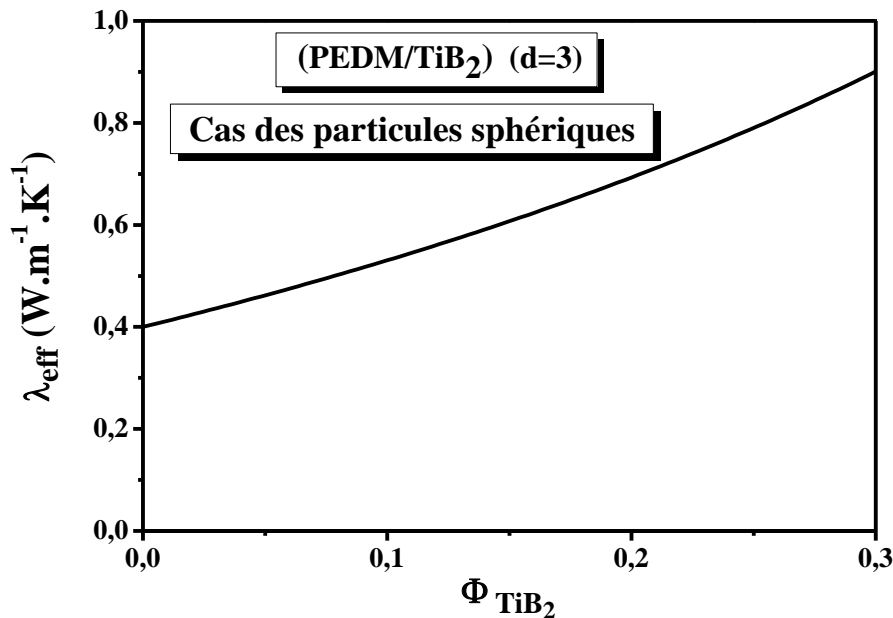


Fig. 3.4. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/ TiB₂), $\lambda_{\text{eff}}(\text{PEDM}/\text{TiB}_2)$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface parfaite.

Sur la figure 3.4, nous avons représenté la variation de la conductivité thermique du composite (PEDM/TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} . Cette figure montre que, dans le cas d'une interface parfaite et des particules sphériques, la conductivité thermique varie de manière non linéaire avec l'accroissement de la fraction volumique du renfort. Il convient de préciser que le résultat ainsi obtenu est qualitativement identique à celui retrouvé pour le matériau composite (PEHD/ TiB₂) (Voir la figure 3.2) la seule différence réside dans le fait que la conductivité thermique de ce dernier a dépassé 1W/m.K pour la valeur maximale de Φ_{TiB_2} considérée, soit $\Phi_{\text{TiB}_2}=0,3$.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

❖ Cas des particules cylindriques

Pour établir la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort TiB₂, nous utilisons l'expression suivante pour des particules cylindriques :

$$\lambda_{\text{eff(PEDM /TiB}_2\text{) parfaite}_{(d=2)}} = \lambda_{\text{PEDM}} \frac{1 + (d - 1)\Phi_{\text{TiB}_2} \beta}{1 - \Phi_{\text{TiB}_2} \beta} \quad (3.13)$$

La substitution de la valeur de la conductivité thermique de la matrice PEDM, soit $\lambda_{\text{PEDM}}=0,40\text{W/m.K}$ [27-29] dans l'équation (3.13) permet d'obtenir la loi de variation suivante :

$$\lambda_{\text{eff(PEDM /TiB}_2\text{) parfaite}_{(d=2)}} = 0.40 \frac{1 + 0.9875776398 \Phi_{\text{TiB}_2}}{1 - 0.9875776398 \Phi_{\text{TiB}_2}} \quad (3.14)$$

Pour illustrer l'effet de la géométrie des particules du renfort sur l'évolution de la conductivité thermique des composites (PEDM/ TiB₂), nous avons représenté sur la figure 3.5 la variation de la quantité λ_{eff} en fonction de la fraction volumique du renfort Φ_{TiB_2} . En effet, l'introduction de particules conductrices TiB₂ dans la matrice polymère PEDM peu conductrice permet d'établir des chemins thermiques préférentiels, favorisant ainsi le transfert de chaleur à travers le matériau. Ce qui signifie que les particules de renfort jouent un rôle déterminant dans l'amélioration de la conductivité thermique des matériaux composites.

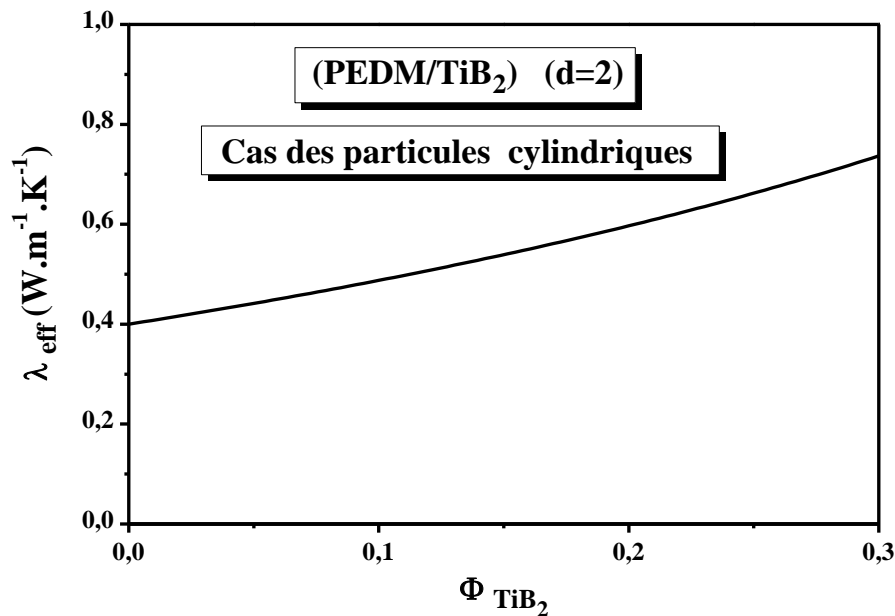


Fig. 3.5. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/TiB₂), $\lambda_{\text{eff(PEDM/TiB}_2\text{)}}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface parfaite.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

3.3.1.3. Matériau Composite (PEBD/ TiB₂)

❖ Cas des particules sphériques

L'utilisation du modèle de Hashin et Shtrikman établi pour le cas de l'interface parfaite nous a permis de déterminer la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort TiB₂ pour des particules sphériques :

$$\lambda_{\text{eff (PEBD /TiB}_2\text{)parfaite}_{(d=3)}} = \lambda_{\text{PEBD}} \frac{1 + (d - 1)\Phi_{\text{TiB}_2}\beta}{1 - \Phi_{\text{TiB}_2}\beta} \quad (3.15)$$

Connaissant la conductivité thermique de la matrice PEBD, la loi de variation de la conductivité thermique effective du matériau composite (PEBD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort Φ_{TiB_2} est donnée par la relation suivante :

$$\lambda_{\text{eff (PEBD /TiB}_2\text{)parfaite}_{(d=3)}} = 0.398 \frac{1 + 1.963145873 \Phi_{\text{TiB}_2}}{1 - 0.9815729366 \Phi_{\text{TiB}_2}} \quad (3.16)$$

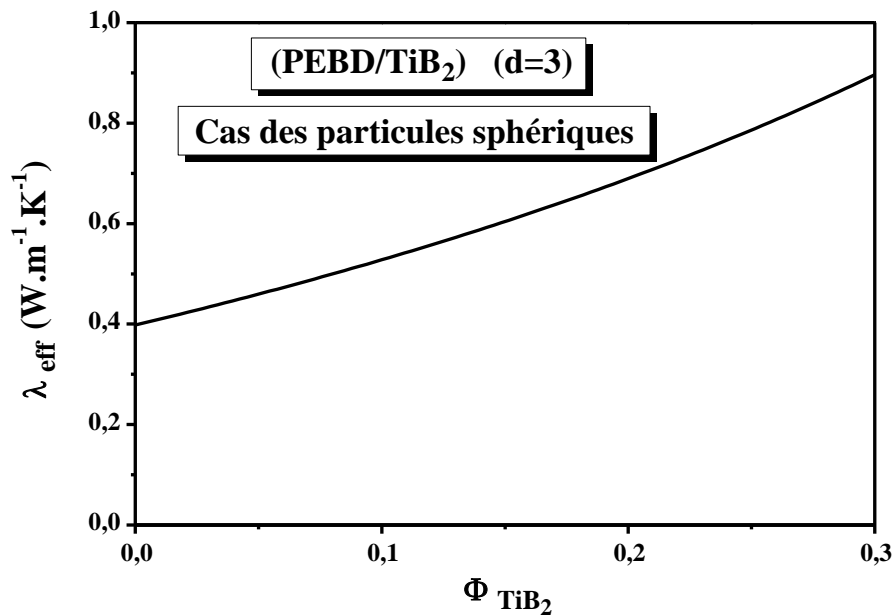


Fig. 3.6. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB₂), $\lambda_{\text{eff (PEBD/TiB}_2\text{)}}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface parfaite.

Afin de mettre en évidence l'effet de la géométrie des particules de renfort dans l'amélioration de la conductivité thermique globale du matériau composite (PEBD/ TiB₂), nous avons représenté sur la figure 3.6 la dépendance de cette quantité à la fraction volumique du renfort

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

TiB₂. L'analyse de cette figure fait apparaître que la forme des particules influence directement la formation et la continuité des chemins thermiques au sein de la matrice.

❖ Cas des particules cylindriques

La loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/ TiB₂) pour des particules cylindriques, en fonction de la fraction volumique du renfort TiB₂, se déduit facilement de l'équation (3.17) en prenant d=2 comme suit :

$$\lambda_{\text{eff(PEBD /TiB}_2\text{) parfaite}_{(d=2)}} = \lambda_{\text{PEBD}} \frac{1 + (d - 1)\Phi_{\text{TiB}_2} \beta}{1 - \Phi_{\text{TiB}_2} \beta} \quad (3.17)$$

Dans ce cas, la conductivité thermique de la matrice PEBD est égale à $\lambda_{\text{PEBD}}=0,398 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ [27-29] et l'équation (3.17) devient alors :

$$\lambda_{\text{eff(PEBD /TiB}_2\text{)parfaite}_{(d=2)}} = 0,398 \frac{1 + 0,9876393677 \Phi_{\text{TiB}_2}}{1 - 0,9876393677 \Phi_{\text{TiB}_2}} \quad (3.18)$$

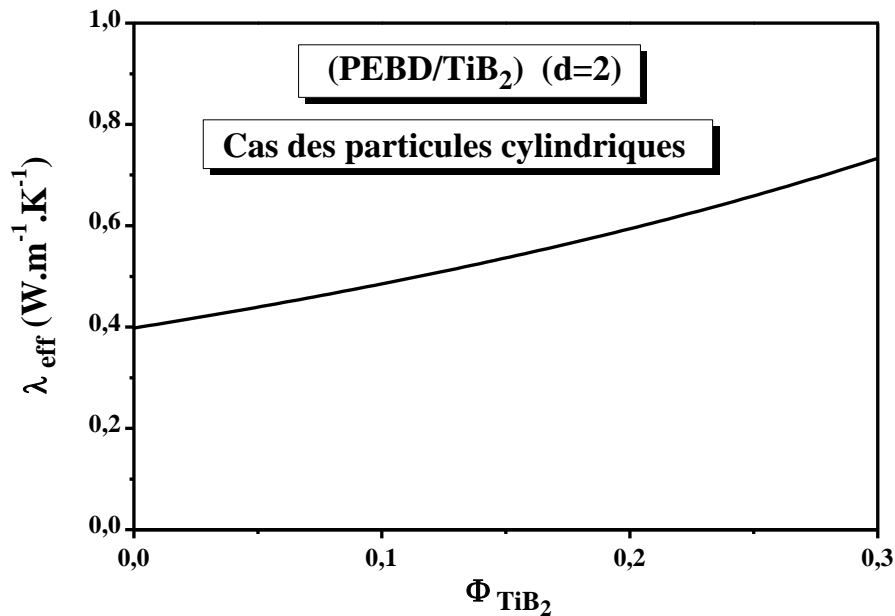


Fig. 3.7. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB₂), $\lambda_{\text{eff(PEBD/TiB}_2\text{)}}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface parfaite.

Pour illustrer de plus près l'effet de la composition et de la géométrie du renfort sur la grandeur physique, λ_{eff} , du composite (PEBD/TiB₂), nous avons représenté sur la figure 3.7 l'évolution de cette grandeur en fonction de la quantité Φ_{TiB_2} pour des particules cylindriques. Comme

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

attendu, l'augmentation de cette fraction volumique se traduit par une amélioration progressive de la conductivité thermique du composite. Cette évolution met en évidence le rôle favorable du TiB₂ dans l'établissement de chemins conducteurs efficaces, contribuant ainsi à l'augmentation des performances thermiques du matériau.

3.3.2. Cas d'une interface imparfaite

Comme il a été mentionné précédemment, dans la deuxième partie de cette étude, nous utilisons le modèle de Hasselman et Johnson pour exprimer la conductivité thermique d'une interface imparfaite entre les particules de renfort. En effet, nous examinerons l'effet de la géométrie et l'impact de l'interface des particules de renfort en diborure de titane (TiB₂) sur la conductivité thermique effective de trois matériaux composites distincts (PEHD/ TiB₂), (PEMD/ TiB₂) et (PEBD/ TiB₂).

3.3.2.1. Cas du matériau composite (PEHD/ TiB₂)

❖ Cas des particules sphériques

Basé sur le modèle de Hasselman et Johnson, l'expression de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort est donné par :

$$\lambda_{\text{eff(PEHD/TiB}_2\text{) imparfaite}} = \lambda_{\text{PEHD}} \frac{2 \left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} \right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{2\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 2}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} \right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{2\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 2} \quad (3.19)$$

La substitution de la valeur de la conductivité thermique de la matrice PEHD dans l'équation (3.19) permet d'accéder facilement à la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort Φ_{TiB_2} :

$$\lambda_{\text{eff(PEHD/TiB}_2\text{) imparfaite}} = 0.463 \frac{-365.54\Phi_{\text{TiB}_2} + 780.22}{182.77\Phi_{\text{TiB}_2} + 780.22} \quad (3.20)$$

La figure 3.8 présente l'évolution de la conductivité thermique des composites (PEHD/TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort TiB₂ dans le cas de particules sphériques. Les résultats montrent que l'augmentation de la teneur en renfort entraîne une légère diminution de la conductivité thermique du composite. Ce comportement peut être attribué à la résistance thermique interfaciale entre la matrice polymère PEHD et les particules de TiB₂, ainsi qu'à la

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

diffusion des phonons au niveau des interfaces matrice/ renfort. En effet, la présence de nombreuses interfaces dans le matériau composite peut perturber les mécanismes de transport de la chaleur, ce qui limite la propagation efficace de l'énergie thermique à travers le matériau. Par conséquent, malgré la conductivité intrinsèque relativement élevée du TiB₂, l'augmentation de la fraction volumique du renfort conduit à une réduction modérée de la conductivité thermique effective du composite.

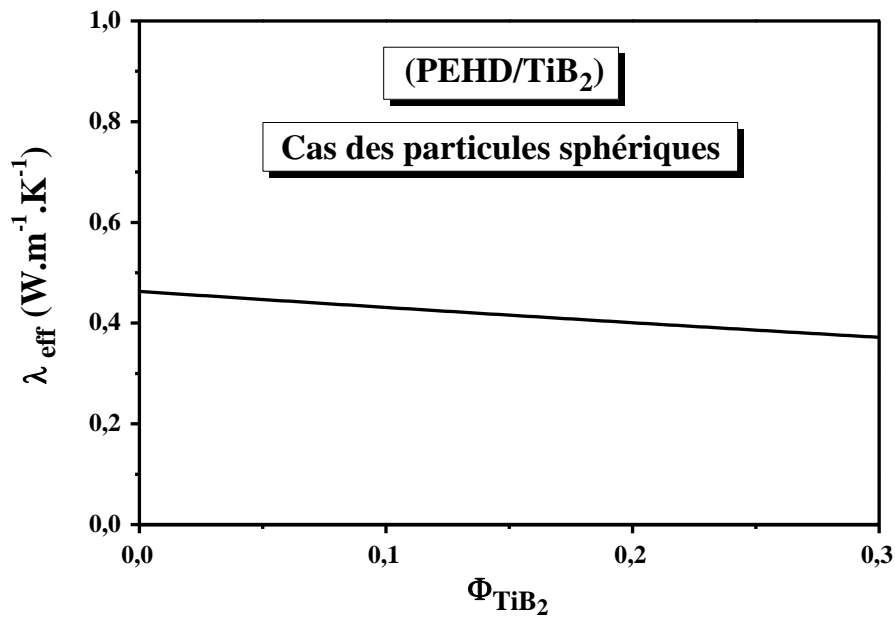


Fig. 3.8. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB₂), $\lambda_{eff(PEHD/TiB_2)}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface imparfaite.

❖ Cas des particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur

En utilisant le modèle de Hasselman et Johnson, la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/ TiB₂) est exprimé, pour des particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur, par :

$$\lambda_{eff(PEHD/TiB_2) \text{ imparfaite}} = \lambda_{PEHD} \frac{\left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_{TiB_2}}{ah_c}\right) \Phi_{TiB_2} + \frac{\lambda_{TiB_2}}{ah_c} + \lambda + 1}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_{TiB_2}}{ah_c}\right) \Phi_{TiB_2} + \frac{\lambda_{TiB_2}}{ah_c} + \lambda + 1} \quad (3.21)$$

Connaissant la valeur de la conductivité thermique, λ_{PEHD} , la loi de variation de la conductivité thermique effective, $\lambda_{eff(PEHD/TiB_2)}$, pour une interface imparfaite est exprimée par :

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

$$\lambda_{\text{eff(PEHD/TiB}_2\text{) imparfaite}} = 0.463 \frac{-182.77\Phi_{\text{TiB}_2} + 459.22}{459.22\Phi_{\text{TiB}_2} + 459.22} \quad (3.22)$$

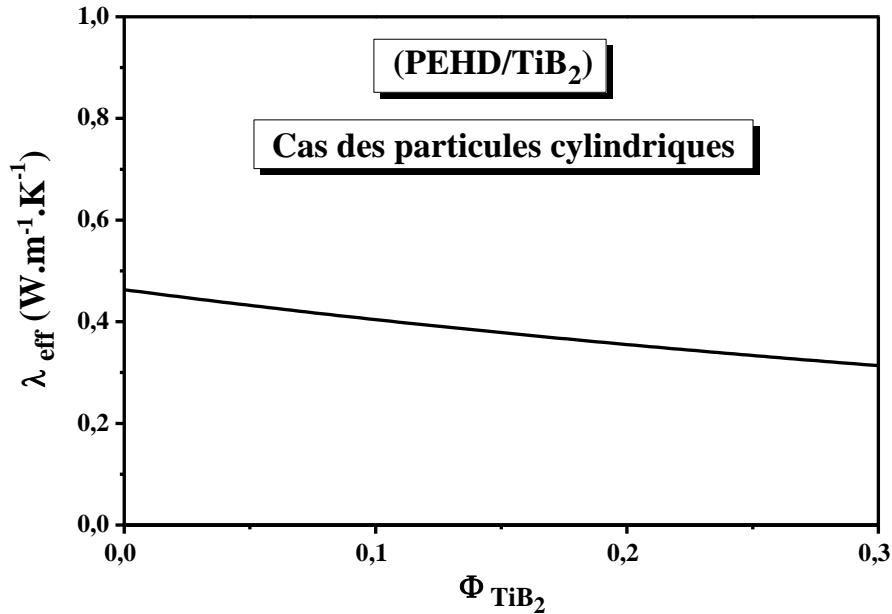


Fig. 3.9. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEHD/TiB₂), $\lambda_{\text{eff(PEHD/TiB}_2\text{)}}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface imparfaite.

La figure 3.9 illustre l'évolution de la conductivité du composite (PEHD/TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort TiB₂ pour des particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur. Contrairement à la configuration impliquant des particules sphériques bien dispersées, l'introduction de particules cylindriques dans la matrice polymère induit une diminution plus marquée de la conductivité thermique effective. Ce comportement met en évidence l'impact significatif de la géométrie et de l'orientation des particules de renfort sur les propriétés thermiques globales du composite étudié.

3.3.2.2. Cas du matériau composite (PEDM/TiB₂)

S'agissant de la dispersion des particules sphériques, la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/TiB₂) est exprimée comme suit :

$$\lambda_{\text{eff(PEDM/TiB}_2\text{) imparfaite}} = \lambda_{\text{PEDM}} \frac{2 \left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} \right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{2\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 2}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} \right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{2\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 2} \quad (3.23)$$

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

Connaissant la valeur de la conductivité thermique de la matrice PEDM, la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite sus-évoqué en fonction de la fraction volumique du renfort dans le cas d'une interface imparfaite, se déduit comme suit :

$$\lambda_{\text{eff(PEDM/TiB}_2\text{) imparfaite}} = 0.40 \frac{-322\Phi_{\text{TiB}_2} + 802}{161\Phi_{\text{TiB}_2} + 802} \quad (3.24)$$

La figure 3.10 illustre la variation de la conductivité thermique effective, λ_{eff} , du matériau composite étudié, pour des fractions volumiques du renfort en TiB₂ comprises entre 0 et 0,3. Dans cette plage de valeurs, et en présence d'une interface imparfaite, on observe une diminution progressive et non linéaire de la conductivité thermique en fonction de l'augmentation de la fraction volumique du renfort. Ce comportement met en évidence l'influence des résistances interfaciales sur l'efficacité du transfert thermique au sein du composite.

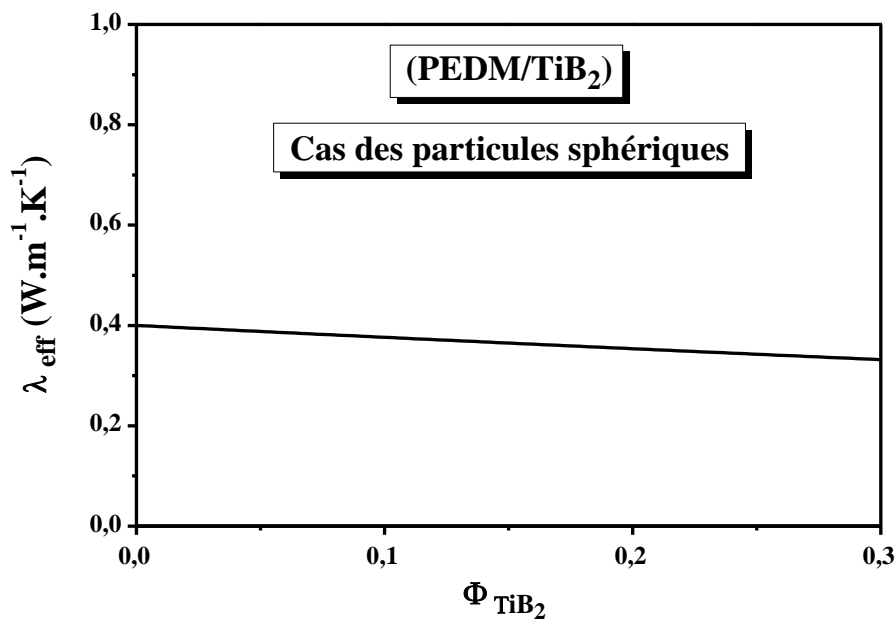


Fig. 3.10. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/TiB₂), $\lambda_{\text{eff(PEDM/TiB}_2\text{)}}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface imparfaite.

❖ Cas des particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur

Dans ce cas, la conductivité thermique effective du matériau composite (PEDM/ TiB₂) s'exprime par :

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

$$\lambda_{\text{eff(PEDM/TiB}_2\text{) imparfaite}} = \lambda_{\text{PEDM}} \frac{\left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c}\right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 1}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c}\right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 1} \quad (3.25)$$

De la même manière que précédemment, la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/ TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort se déduit comme suit :

$$\lambda_{\text{eff(PEDM/TiB}_2\text{) imparfaite}} = 0.40 \frac{-161\Phi_{\text{TiB}_2} + 481}{481\Phi_{\text{TiB}_2} + 481} \quad (3.26)$$

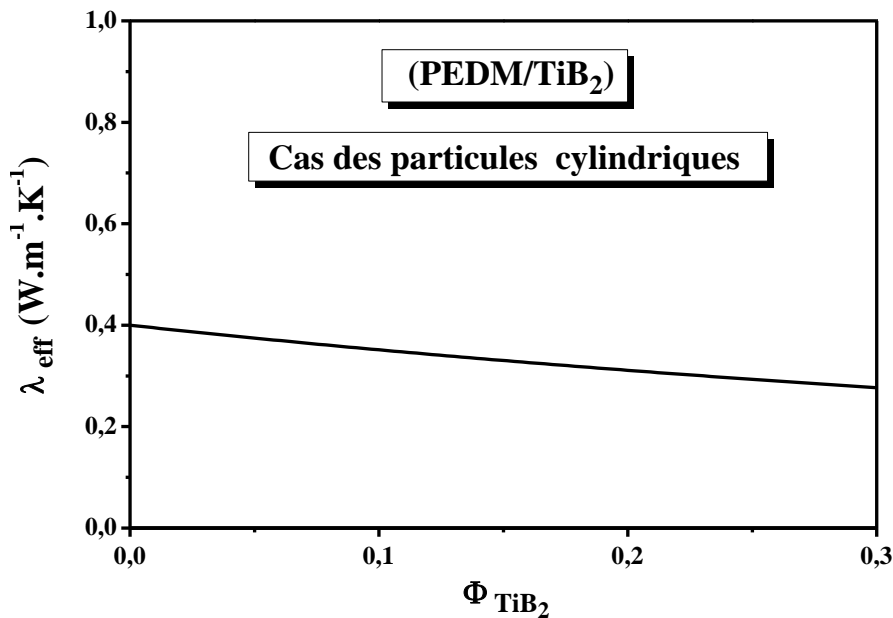


Fig. 3. 11. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEDM/TiB₂), $\lambda_{\text{eff(PEDM/TiB}_2\text{)}}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface imparfaite.

L'analyse des résultats obtenus met clairement en évidence l'impact combiné de la géométrie, de l'orientation des particules de renfort et de la qualité de l'interface sur les performances thermiques des composites polymères chargés. En particulier, la figure 3.11 montre que, pour des particules cylindriques orientées perpendiculairement à la direction du flux thermique, la conductivité thermique effective du composite (PEDM/TiB₂) diminue avec l'augmentation de la fraction volumique du renfort, lorsque l'interface est imparfaite. Ce comportement s'explique par la difficulté du transfert de chaleur à travers les particules dispersées aléatoirement, ainsi que par la présence de résistances interfaciales qui agissent comme des barrières thermiques

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

supplémentaires. L'orientation perpendiculaire des particules limite la formation de chemins thermiques directs, réduisant ainsi la connectivité entre les zones conductrices au sein du matériau. Cette observation souligne l'importance d'optimiser à la fois la qualité de l'interface et l'alignement des particules pour améliorer la conductivité thermique globale du composite.

3.3.2.3. Cas du matériau composite (PEBD/ TiB₂)

❖ Cas de la dispersion des particules sphériques

L'expression de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB₂) pour des particules sphériques dispersées de manière homogène est donnée par :

$$\lambda_{\text{eff(PEBD/TiB}_2\text{) imparfaite}} = \lambda_{\text{PEBD}} \frac{2 \left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} \right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{2\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 2}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} \right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{2\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 2} \quad (3.27)$$

La loi de variation de la quantité λ_{eff} du matériau composite (PEBD/ TiB₂) en fonction de Φ_{TiB_2} dans le cas d'une interface imparfaite est donnée par :

$$\lambda_{\text{eff(PEBD/TiB}_2\text{) imparfaite}} = 0.398 \frac{-320\Phi_{\text{TiB}_2} + 802.80}{160.19\Phi_{\text{TiB}_2} + 802.80} \quad (3.28)$$

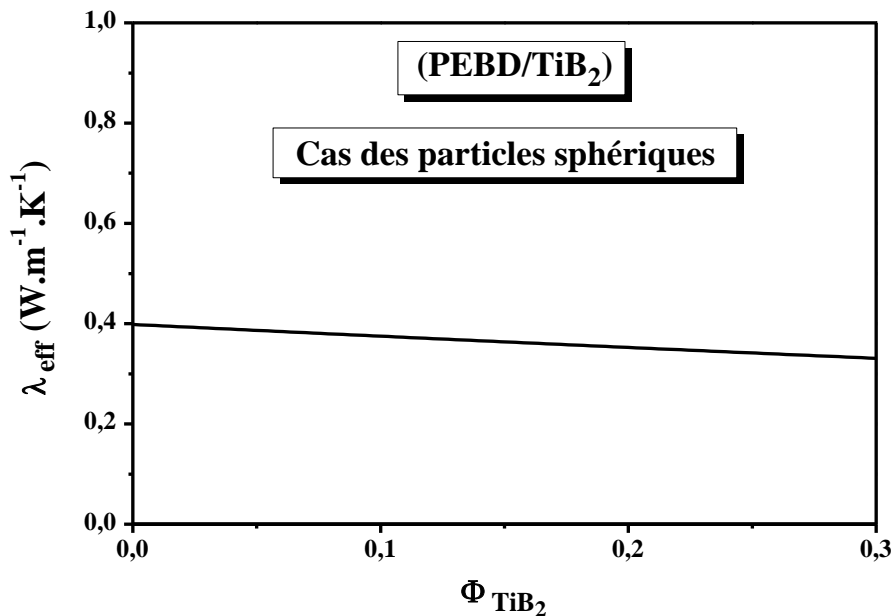


Fig. 3.12. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB₂), $\lambda_{\text{eff(PEBD/TiB}_2\text{)}}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules sphériques et une interface imparfaite.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

Sur la figure 3.12, nous avons représenté la variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort, dans le cas de particules sphériques et d'une interface imparfaite. L'analyse de cette figure met en évidence un comportement distinct de celui observé lorsque l'interface est parfaite, soulignant l'influence de la qualité de l'interface sur les propriétés thermiques globales du composite.

❖ Cas des particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux de chaleur

Pour établir la loi de variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB₂), nous utilisons l'expression suivante :

$$\lambda_{\text{eff(PEBD/TiB}_2\text{) imparfaite}} = \lambda_{\text{PEBD}} \frac{\left(\lambda - 1 - \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c}\right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 1}{\left(1 - \lambda + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c}\right) \Phi_{\text{TiB}_2} + \frac{\lambda_{\text{TiB}_2}}{ah_c} + \lambda + 1} \quad (3.29)$$

Connaissant la valeur de la conductivité thermique de la matrice PEBD, l'équation (3.29) devient alors :

$$\lambda_{\text{eff(PEBD/TiB}_2\text{) imparfaite}} = 0.398 \frac{-160\Phi_{\text{TiB}_2} + 481.80}{481.80\Phi_{\text{TiB}_2} + 481.80} \quad (3.30)$$

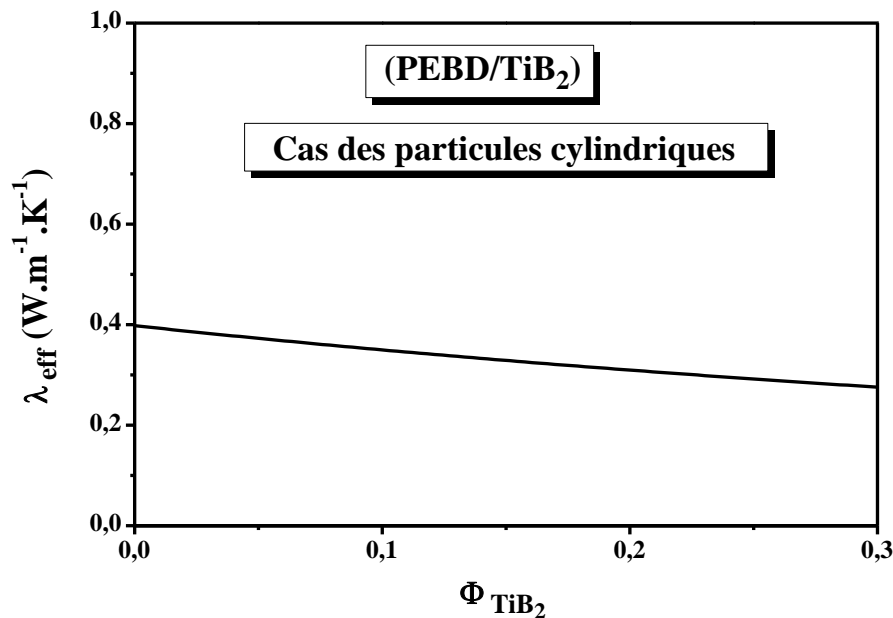


Fig. 3.13. Variation de la conductivité thermique du matériau composite (PEBD/TiB₂), $\lambda_{\text{eff(PEBD/TiB}_2\text{)}}$, en fonction de la fraction volumique du renfort, Φ_{TiB_2} , pour des particules cylindriques et une interface imparfaite.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

La figure 3.13 illustre la variation de la conductivité thermique du composite (PEBD/TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort, pour des particules cylindriques orientées perpendiculairement à la direction du flux thermique. En présence d'une interface imparfaite, l'augmentation de la teneur en renfort entraîne, comme attendu, une diminution progressive de la conductivité thermique effective. Cette baisse est d'autant plus prononcée que celle observée dans le cas de particules sphériques, ce qui souligne l'influence importante de la géométrie, de l'orientation des particules et de la qualité de l'interface sur les performances thermiques du composite.

3.3.3. Étude comparative entre les deux interfaces

En ce qui concerne les particules sphériques, l'étude comparative des conductivités thermiques du composite (PEHD/TiB₂) s'appuie sur les lois de variation établies précédemment par les équations (3.8) et (3.20). L'analyse des figures 3.2 et 3.8 met en évidence que, lorsque la fraction volumique du renfort augmente, la conductivité thermique du composite doté d'une interface parfaite croît de manière significative, tandis que celle du même matériau présentant une interface imparfaite décroît. Un comportement analogue est observé pour les particules cylindriques. En effet, les figures 3.3 et 3.9 montrent que, dans les deux configurations interfaciales, la conductivité thermique évolue de manière non linéaire avec la fraction volumique du renfort. De manière générale, les résultats confirment que la présence d'une interface parfaite favorise un transfert thermique plus efficace, conduisant à des valeurs de conductivité thermique nettement supérieures à celles obtenues dans le cas d'une interface imparfaite.

Les figures 3.4, 3.5, 3.10 et 3.11 présentent l'évolution de la conductivité thermique des composites (PEDM/TiB₂) en fonction de la fraction volumique du renfort, en distinguant les cas d'interfaces parfaite et imparfaite, dans le cadre d'une étude comparative. L'analyse de ces résultats met en évidence une augmentation progressive de la conductivité thermique effective, λ_{eff} en présence d'une interface idéale, tandis qu'une interface imparfaite entraîne une diminution de cette grandeur avec l'augmentation de Φ_{TiB_2} . Cette différence de comportement met en lumière le rôle déterminant de la nature de l'interface dans le transfert thermique, ainsi que l'impact majeur de la configuration spatiale et de la géométrie des particules de renfort sur les performances thermiques globales du composite.

Afin de comparer la variation de la conductivité thermique du composite (PEBD/TiB₂) en fonction de la géométrie des particules de renfort (sphériques ou cylindriques), l'analyse

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

s'appuie sur les lois de variation établies précédemment. Les figures 3.6, 3.7, 3.12 et 3.13 illustrent l'évolution de la conductivité thermique du composite en fonction de la fraction volumique de TiB₂, en considérant à la fois des interfaces parfaites et imparfaites. Il ressort de cette analyse que, quelle que soit la géométrie des particules, la conductivité thermique varie de manière non linéaire avec l'augmentation de la teneur en renfort. Il convient de préciser toutefois que, cette comparaison met clairement en évidence que les composites dotés d'une interface parfaite présentent systématiquement des valeurs de conductivité thermique plus élevées que ceux présentant une interface imparfaite, ce qui confirme l'importance cruciale de la qualité de l'interface dans le transport thermique des composites chargés.

En synthèse, les résultats obtenus soulignent l'impact crucial de la configuration des particules et de la qualité de l'interface sur la conductivité thermique globale des matériaux composites. Ils révèlent également que le comportement thermique des composites est étroitement lié à la géométrie des particules et aux caractéristiques de l'interface. L'introduction de renfort peut entraîner soit une amélioration, soit une diminution de la conductivité thermique en fonction de ces paramètres, ce qui constitue un facteur déterminant dans la conception de composites optimisés pour des applications spécifiques.

3.4. Conclusion

Cette étude comparative des composites (PEHD/TiB₂), (PEDM/TiB₂) et (PEBD/TiB₂) met en lumière l'influence déterminante de l'interface entre les particules de diborure de titane, TiB₂, et les matrices en polyéthylène (PEHD, PEDM, PEBD) sur la conductivité thermique effective des matériaux. En considérant à la fois les interfaces parfaites et imparfaites, il a été observé que la conductivité thermique des composites est systématiquement plus élevée pour des interfaces parfaites que pour des interfaces imparfaites. Cette différence peut être principalement attribuée à la résistance thermique de contact entre les matrices polymères et les particules de TiB₂, qui perturbe le transfert de chaleur.

L'analyse a également révélé que plusieurs facteurs influencent de manière significative cette résistance thermique de contact, notamment la taille des particules de renfort, les propriétés spécifiques de chaque matrice polymère, ainsi que l'épaisseur de l'interface. Ces paramètres ont un impact direct sur la conductivité thermique globale des composites étudiés, ce qui démontre l'importance d'une maîtrise fine de la configuration des particules et de la qualité de l'interface pour optimiser les propriétés thermiques des matériaux.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

Il est important de souligner que la conductivité thermique des composites est intimement liée au type d'interface, que celle-ci soit parfaite ou imparfaite, notamment pour les particules sphériques et cylindriques. L'épaisseur de l'interface, en particulier, joue un rôle fondamental dans la détermination des résistances thermiques du composite, renforçant ainsi l'idée que les performances thermiques d'un matériau composite dépendent non seulement de la nature du renfort mais aussi de la qualité de son intégration dans la matrice polymère.

Les résultats de cette étude mettent en évidence la nécessité de prendre en compte ces facteurs lors de la conception de composites à haute performance thermique. En effet, une compréhension approfondie de la configuration des particules et de l'interface permet de concevoir des matériaux dont la conductivité thermique et les propriétés mécaniques peuvent être optimisées pour des applications spécifiques. Ce travail contribue à enrichir la littérature sur les composites polymères, en soulignant l'importance cruciale de la forme des particules et de la qualité de l'interface pour le comportement thermique des matériaux.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

3.5. Références

- [1] M. Chauvin, B. Lascoup, “Contribution to the thermal conductivity of a composite material” *Proceeding of 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17) 2011*, p. 1.
- [2] A. Boudenne, “Étude expérimentale et théorique des propriétés thermo-physiques de matériaux composites à matrice polymère” *Thèse de Doctorat*, Université de Paris, France, 2003.
- [3] Les caractéristiques du polyéthylène (PE) & son utilité, 2022.
<https://www.naite.fr/blog/caracteristiques-polyethylene>
- [4] Understanding polyethylene types properties and applications, 2024.
<https://reads.alibaba.com/fr/understanding-polyethylene-types-properties-and-applications/>
- [5] H. Saci, “Préparation et caractérisation thermique du Polyéthylène basse densité modifié par réticulation” *Thèse de Doctorat*, Université Ferhat Abbas–Sétif 1, Algérie, 2017.
- [6] Titanium diboride powder, 2023.
<https://met3dp.com/fr/titanium-diboride-powder-20240123/>
- [7] Cibles de pulvérisation en diborure de titane.
<https://www.plansee.com/fr/produits/cibles-de-pulverisation-en-diborure-de-titane.html>
- [8] V. Promakhov, A. Matveev, N. Schulz, P. Dronov, A. Zhukov, A. Vorozhtsov, “Structure, Properties and Phase Composition of Composite Materials Based on the System NiTi-TiB₂”, *Materials* **2022**, 15, 5327.
- [9] Titanium diboride market size and share, growth analysis 2036, 2024.
<https://www.researchnester.com/fr/reports/titanium-diboride-market/5827>
- [10] L. Ropars, “Composites à matrice titane et renforts TiB élaborés par métallurgie des poudres : cinétique de transformations des phases, formation des microstructures et propriétés mécaniques” *Thèse de Doctorat*, Université de Lorraine, France, 2016.
- [11] Composites à matrice polymère.
<https://www.studysmarter.fr/resumes/ingenierie/genie-des-materiaux/composites-a-matrice-polymere/>

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

- [12] L. Gebrehiwet, E. Abate, Y. Negussie, E. Abeselom, T. Teklehaymanot, "Application Of Composite Materials In Aerospace & Automotive Industry: Review" *International Journal of Advances in Engineering and Management* **2023**, 5(3), 697-723.
- [13] E. Salernitano, C. Migliaresi, "Composite Materials for Biomedical Applications: A Review" *Journal of Applied Biomaterials and Biomechanics* **2003**, 1(1), 3-18.
- [14] Y. Lei, Q. Wu, F. Yao, Y. Xu, "Preparation and properties of recycled HDPE/natural fiber composites" *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* **2007**, 38(7), 1664-1674.
- [15] M. Di Maro, D. Duraccio, G. Malucelli, MG. Faga, "High density polyethylene composites containing alumina-toughened zirconia particles: Mechanical and tribological behavior" *Composites Part B: Engineering* **2021**, 217, 108892.
- [16] Polyéthylène haute densité PE-HD, 2016.
<https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/matieres-thermoplastiques-monographies-42147210/polyethylene-haute-densite-pe-hd-am3315/>
- [17] Polyéthylène haute densité (HDPE) : un regard en profondeur.
<https://www.linseis.com/fr/connaitre/polyethylene-haute-densite-hdpe-un-examen-approfon/>
- [18] Polyéthylènes basse densité PE-BD et PE-BDL, 2011.
<https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/matieres-thermoplastiques-monographies-42147210/polyethylenes-basse-densite-pe-bd-et-pe-bdl-am3310/>
- [19] Low-density polyethylene (LDPE): summary.
<https://www.linseis.com/fr/connaitre/polietileno-de-baja-densidad-ldpe-resumen/>
- [20] K. Djazouli, "Caractérisation et Simulation D'un Matériau Composite, Structures Aéronautiques" *Thèse de Doctorat*, Université de Blida 1, Algérie, 2022.
- [21] R. Benghanem, "Etude théorique de la conductivité thermique des composites" *Mémoire de Master*, Université de M'SILA, Algérie, 2017.
- [22] D.M. Bigg, "Thermal Conductivity of Heterophase Polymer Compositions. In: Thermal and Electrical Conductivity of Polymeric Materials" *Advances in Polymer Science* **1995**, 119, 1-30.

Chapitre 3. Contribution à l'analyse du comportement thermique des composites polymères : Cas des composites polyéthylènes/diborure de titane (PE/TiB₂)

- [23] M. Chikhi, B. Agoudjil, M. Haddadi, A. Boudenne, “Numerical modelling of the effective thermal conductivity of heterogeneous materials”, *Journal of Thermoplastic Composite Materials* **2011**, 26(3), 336-345.
- [24] N. Ghebrid, “Étude des problèmes de conduction thermique dans un matériau composite à matrice polymère pigmentée de dioxyde de Titane” *Thèse de Doctorat*, Université de Sétif 1, Algérie, 2018.
- [25] Z. Hashin, S. Shtrikman, “A variational approach to the theory of the effective magnetic permeability of multiphase materials”, *J. Appl. Phys.* **1962**, 33, 3125.
- [26] D.P.H. Hasselman, L. Johnson, “Effective Thermal Conductivity of Composites with Interfacial Thermal Barrier Resistance” *Journal of Composite Materials* **1987**, 21(6), 508-515.
- [27] Titanium Diboride Sputtering Targets, Layered Materials.
<https://www.plansee.com/en/products/titanium-diboride-sputtering-targets.html>
- [28] I. Krupa, I. Novak, I. Chodak, “Electrically and thermally conductive polyethylene/graphite composites and their mechanical properties” *Synthetic Metals* **2004**, 145 (2-3), 245-252.
- [29] Medium-Density-Polyethylene-MDPE, Material Properties.
<https://www.makeitfrom.com/materialproperties/Medium-Density-Polyethylene-MDPE>
- [30] R. Bénédicte, “Etude et simulation de la conductivité thermique de matériaux composites à matrice organique chargée et renforcée de fibres de carbone PITCH” *Thèse de Doctorat*, Université Toulouse, France, 2014.

CHAPITRE 4

**Influence de la Morphologie
des Particules Sur les
Processus d'Échange de
Chaleur Dans les Composites à
Matrice Polymère**

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

4.1. Introduction

Les avancées technologiques récentes ont considérablement renforcé l'intérêt pour les matériaux composites, lesquels se révèlent désormais essentiels dans de nombreux secteurs industriels en raison de leurs performances mécaniques et thermiques optimisées. Dans le cadre de ce travail doctoral, l'accent est mis sur l'étude du transfert thermique au sein de ces matériaux hétérogènes, en mobilisant des approches analytiques et numériques de pointe. L'analyse s'articule autour de plusieurs paramètres déterminants, notamment la conductivité thermique effective, la résistance thermique interfaciale et l'influence des renforts fibreux à haute conductivité thermique. Cette étude vise à caractériser avec précision les mécanismes de transfert de chaleur à travers la matrice composite et d'évaluer leur sensibilité aux variations de structure et de composition. Cette recherche intègre également une dimension appliquée, en explorant les potentialités des matériaux composites dans des contextes d'usage exigeants, notamment sous fortes contraintes thermiques ou dans des environnements à haut gradient de température. L'utilisation d'outils de simulation avancés (tels que les logiciels de calcul par éléments finis...) permet d'élaborer des modèles prédictifs robustes et d'affiner la compréhension des phénomènes thermiques multi-échelles. Ainsi, cette étude vise à contribuer au développement de matériaux composites thermiquement optimisés, en apportant une meilleure compréhension des interactions entre les constituants, des phénomènes de dissipation thermique et des effets de la microstructure sur les propriétés globales du matériau.

Ce travail s'inscrit également dans une perspective de développement des applications des matériaux composites dans un large éventail de domaines, englobant l'ensemble des disciplines de l'ingénierie. Ces applications s'étendent du secteur biomédical à l'industrie lourde, en passant par la fabrication de composants électroniques et les systèmes de transport modernes tels que les automobiles, les avions et les navires [1]. Pour accroître l'efficacité de ces matériaux tout en préservant leurs propriétés thermiques et mécaniques, il est impératif de surmonter les limitations inhérentes à la résistance thermique et aux mécanismes de transfert de chaleur. À cette fin, une analyse rigoureuse de la résistance thermique dans le contexte de l'ingénierie des matériaux et de la thermodynamique s'avère indispensable [2].

Le présent travail vise à approfondir la compréhension des phénomènes thermiques, en particulier la résistance thermique et le transfert de chaleur dans les matériaux composites. L'étude se focalise sur un système composite spécifique à matrice polymère, à savoir le

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

polyéthylène de haute densité (PEHD) renforcé par des particules de diborure de titane (TiB_2), dans lequel l'impact de la géométrie des inclusions cylindriques est étudié de manière détaillée. L'analyse porte notamment sur l'influence de paramètres géométriques tels que la forme des particules, le rayon de courbure des bords, ainsi que la nature de la matrice polymère sur les mécanismes de transfert thermique par conduction. Une attention particulière est accordée aux interactions thermiques complexes entre les renforts et la matrice, afin d'évaluer la manière dont ces paramètres influencent la conductivité thermique effective et la résistance thermique conductive du composite (PEHD/ TiB_2). En outre, cette étude vise à élucider les corrélations entre les propriétés géométriques des renforts, les caractéristiques de la matrice polymère, et le comportement thermique global du matériau. L'effet du rayon des bords sur le transfert de chaleur constitue un axe central de l'analyse, permettant non seulement de mieux caractériser les mécanismes thermiques internes du composite, mais aussi de proposer de nouveaux modèles pour l'estimation de la résistance thermique dans diverses configurations.

La loi fondamentale du transfert thermique, à savoir la loi de Fourier en régime de conduction, est utilisée pour exprimer les résistances thermiques en fonction du rayon radial r . Une compréhension approfondie de ces phénomènes, incluant la conductivité thermique, la résistance thermique, ainsi que le gradient de température à travers la structure composite, est cruciale pour l'optimisation des performances thermiques. Cette approche ouvre ainsi des perspectives prometteuses pour une intégration efficace des matériaux composites dans des applications avancées.

4.2. Les modes de transfert thermique

Dans cette étude, le transfert de chaleur est abordé comme un enjeu majeur dans de nombreux secteurs industriels et scientifiques. Que ce soit pour les générateurs de vapeur, les réacteurs chimiques, les fours industriels ou les échangeurs thermiques, la gestion des flux thermiques est cruciale pour assurer l'efficacité et la performance des systèmes. En particulier, dans les procédés impliquant des réactions fortement endothermiques ou exothermiques, la vitesse du transfert thermique devient souvent le facteur limitant, influençant les coûts opérationnels plus que la réaction chimique elle-même. Dans le contexte actuel de hausse des prix de l'énergie, l'optimisation des performances thermiques apparaît comme une priorité stratégique, à la fois pour des raisons économiques et écologiques.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

Le transfert de chaleur peut être conçu pour atteindre divers objectifs, tels que l'augmentation de l'énergie échangée, l'optimisation de l'efficacité des sources thermiques, ou encore la régulation des flux thermiques entre des milieux distincts. Ce phénomène est régi par les gradients de température et se manifeste principalement sous trois formes : la conduction, la convection et le rayonnement [4] (Voir la figure 4.1).

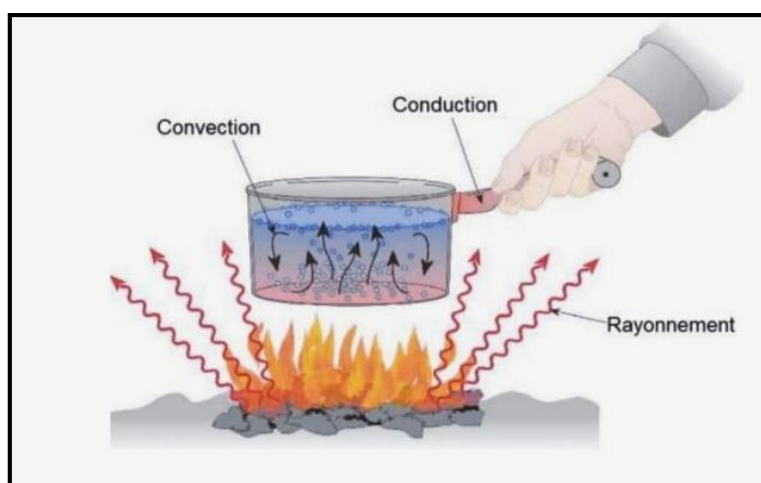


Fig. 4.1. Les trois modes de transfert thermique : par conduction, par convection et par rayonnement [3].

4.2.1. Transfert thermique par conduction

La conduction thermique, définie comme le transfert de chaleur dans un milieu matériel au repos, sans déplacement macroscopique de matière, repose sur des phénomènes microscopiques tels que l'agitation thermique des atomes et des molécules, ainsi que le déplacement des électrons libres dans les matériaux conducteurs comme les métaux [4]. Ce transfert d'énergie s'effectue des zones de haute température, où l'agitation thermique est significative, vers les zones de basse température, où cette agitation est réduite [5]. En effet, lorsque la température d'un corps augmente, l'énergie cinétique de ses particules (mouvements de translation, vibration et rotation) s'accroît également, favorisant ainsi le transfert de chaleur par conduction [6], comme le montre la figure 4.2. Ce processus de diffusion permet ainsi à la chaleur de se propager à l'intérieur des corps solides. Il a également été observé que ce phénomène peut se produire dans les fluides au repos, bien que sa réalisation dans le vide, en l'absence de support moléculaire, ne soit pas possible [7].

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

4.2.3. Transfert thermique par rayonnement

Le transfert thermique sans contact direct entre les corps, également connu sous le nom de rayonnement thermique, est un processus qui s'effectue sans support matériel [4], [5]. Ce phénomène, qui repose sur l'émission d'ondes électromagnétiques par tout corps en fonction de sa température, permet, par exemple, à la chaleur du soleil d'atteindre la terre en traversant le vide spatial [7]. Dans le cadre de la physique des particules, l'émission radiative représente la conversion de l'agitation des particules, notamment des électrons, en énergie rayonnante. Par ailleurs, l'absorption correspond au processus inverse, impliquant la captation de cette énergie par un corps et l'augmentation correspondante de son agitation thermique [4], [7]. En outre, il convient de souligner que l'intensité du rayonnement émis par un corps est proportionnelle à sa température. En effet, plus celle-ci est élevée, plus l'intensité du rayonnement est importante. Ce mode de transfert se manifeste principalement dans les milieux transparents ou semi-transparentes, tels que le vide, certains gaz ou encore des milieux contenant des fumées ou de la vapeur d'eau [7].

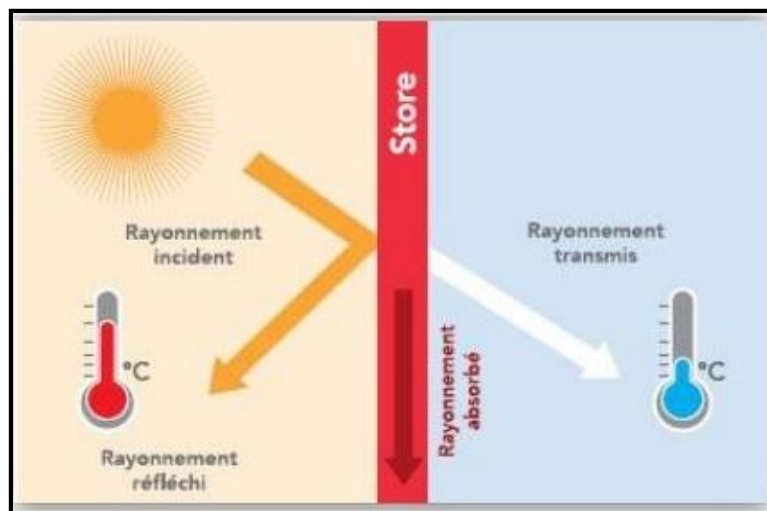


Fig. 4.4. Transfert thermique par rayonnement [8].

4.3. Modélisation de la résistance thermique d'un matériau composite de forme cylindrique

Basé sur la loi de Fourier, dans la présente étude, nous présentons les relations fondamentales qui permettent de calculer les résistances thermiques de conduction du renfort, de la matrice et de l'interface. Pour ce faire, nous avons considéré un matériau composite constitué d'une

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

matrice polymère en polyéthylène de haute densité (PEHD) et de particules de renfort en diborure de titane (TiB_2). Les particules de renfort considérées dans cette étude possèdent une géométrie cylindrique, définie par un rayon r_1 , une conductivité thermique λ_r et une longueur L . La matrice en polyéthylène qui les entoure, dont la forme est également cylindrique, est quant à elle caractérisée par un rayon externe r_2 , une conductivité thermique λ_m et une longueur identique L . Les surfaces cylindriques correspondantes sont maintenues à des températures uniformes et constantes T_1 et T_2 comme le montre la figure 4.5. Dans ces conditions, le gradient de température est radial. En outre, il est supposé que l'interface entre le renfort et la matrice est constituée d'une couche d'air immobile, de conductivité thermique $\lambda_{\text{air}}=0.026$ (W/m.K) [9]. Cette configuration géométrique permet d'étudier plus précisément l'impact des paramètres géométriques et thermo-physiques sur le comportement thermique global du matériau composite.

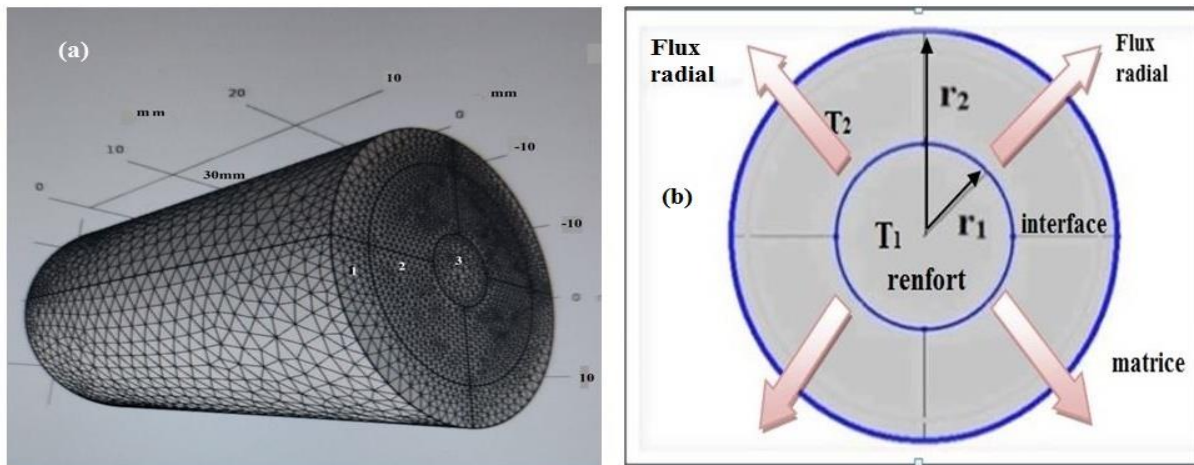


Fig. 4.5. (a) Composite cylindrique constitué d'une matrice, d'une interface et d'un renfort.

(b) Coupe transversale d'un matériau composite.

4.4. Modélisation et simulation du transfert de chaleur

4.4.1. Objectif de la simulation

Dans le cadre de cette étude, une modélisation numérique ainsi qu'une simulation du transfert de chaleur ont été réalisées au sein du matériau composite (PEHD/ TiB_2), en tenant compte des interactions thermiques entre la matrice polymère PEHD, l'interface et les particules de renfort en diborure de titane TiB_2 .

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

4.4.2. Outil de simulation : COMSOL Multiphysics

Dans le cadre de cette étude, une modélisation numérique a été employée afin d'analyser les mécanismes d'échange de chaleur dans les composites. Cette analyse s'est effectuée en utilisant le logiciel de simulation COMSOL Multiphysics. Ce logiciel permet d'examiner l'influence de la forme des particules et de la taille de l'interface sur la résistance thermique. Cette approche méthodique permet d'évaluer l'impact de ces paramètres géométriques sur le transfert thermique au sein des matériaux composites. L'accent sera mis sur la réponse thermique globale du matériau, afin d'offrir une perspective approfondie sur le transfert de chaleur dans ces structures multi-composant.

4.4.3. Paramètres physiques et propriétés des matériaux

Dans le cadre de la modélisation numérique de la structure du matériau composite (PEHD/TiB₂), les différents paramètres des couches constitutives, à savoir le renfort, l'interface et la matrice, sont méticuleusement détaillés dans le tableau 4.1. Ces valeurs caractéristiques permettent une description exhaustive des propriétés physiques et thermiques de chaque composant du matériau composite utilisé [11-14].

Paramètres	Renfort : TiB₂	Matrice : PEHD
Température T (K)	333.15	300.15
Rayon r (mm)	10	22
Longueur L (mm)	30	30
Conductivité thermique λ (W/m.K)	64	0.463
Masse Volumique μ (g/cm ³)	4.5	0.945

Tableau 4.1. Paramètres utilisés dans la simulation [11-14].

4.4.4. Résultats de la simulation

Le logiciel 'COMSOL Multiphysics', employé dans le cadre de cette étude, a permis d'intégrer l'ensemble des paramètres physiques et géométriques préalablement définis. Cet

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

environnement de simulation a offert un cadre numérique rigoureux pour représenter de manière précise la distribution spatiale et la trajectoire du flux thermique à l'intérieur du matériau composite.

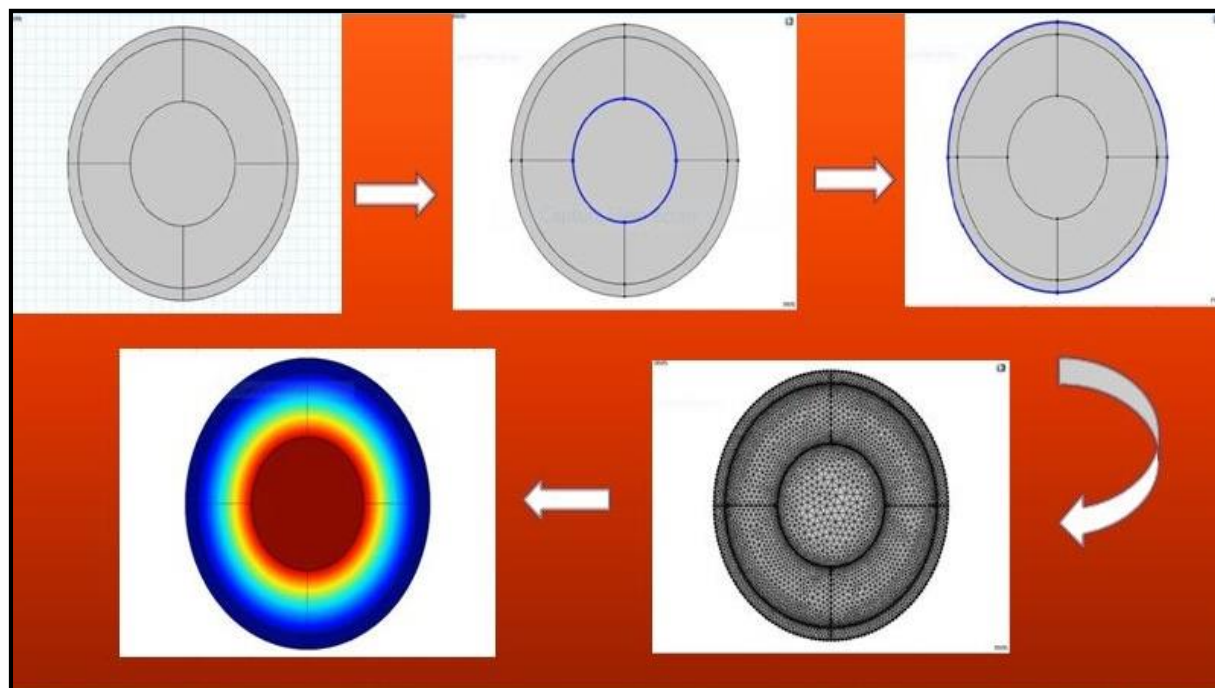


Fig. 4.6. Effet de la forme des particules sur l'échange de chaleur au sein du composite.

Comme le montre la figure 4.6, l'analyse menée a permis de mettre en évidence l'influence de la géométrie des particules de renfort sur les mécanismes de transfert de chaleur au sein du matériau composite. Dans cette étude, la forme cylindrique des particules de TiB_2 a été explicitement prise en compte lors de la modélisation et de la simulation numérique. Cette démarche a permis d'effectuer une analyse approfondie des caractéristiques thermiques du système, en particulier en ce qui concerne l'impact de la morphologie des renforts sur la distribution du flux thermique et sur la résistance thermique globale du composite.

La figure 4.7 illustre de manière schématique le mécanisme de transfert thermique à travers un matériau composite. Cette représentation met en évidence la direction du flux thermique ainsi que la propagation de l'énergie thermique depuis les zones internes vers la périphérie du matériau. Une compréhension fine de ce phénomène s'avère essentielle pour l'optimisation des performances thermiques des composites, notamment dans le cadre de leurs diverses applications industrielles.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

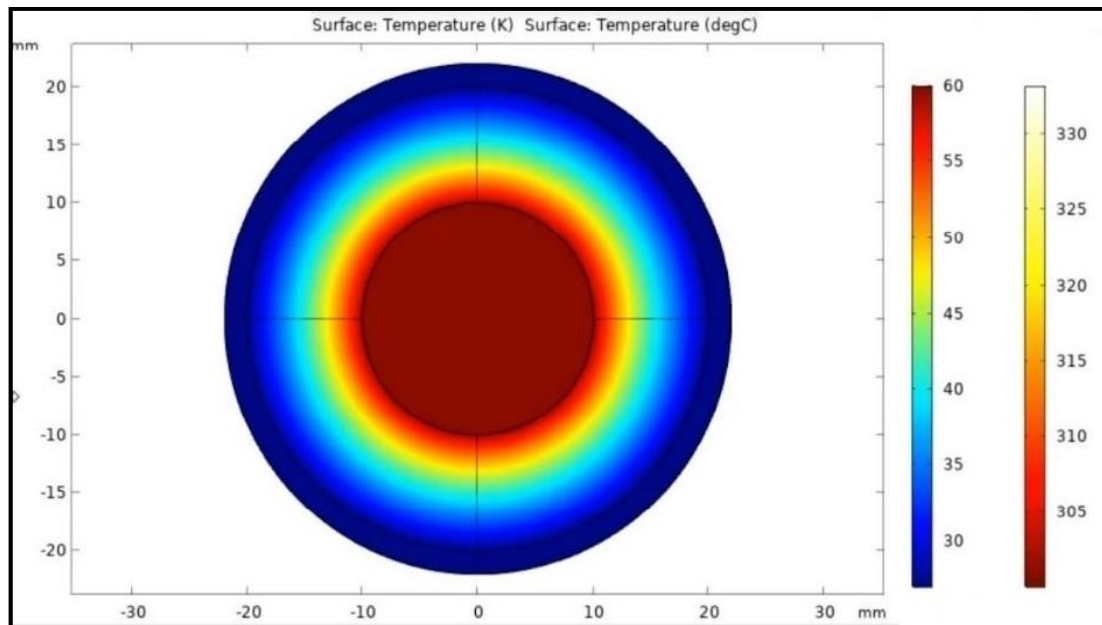


Fig. 4.7. Impact de la forme des particules sur l'échange de chaleur au sein du composite.

Les résultats de la simulation révèlent que, sous l'effet du gradient de température établi entre les zones internes et externes du matériau composite, le flux thermique s'oriente principalement du centre des particules de renfort vers la périphérie du système. Pour étudier de manière détaillée les échanges thermiques à l'échelle locale notamment entre la matrice polymère, l'interface et les particules de renfort ; un modèle numérique rigoureux a été développé. Ce dernier intègre les propriétés thermophysiques des constituants ainsi que des conditions aux limites spécifiquement adaptées au contexte étudié.

Cette méthodologie de modélisation a permis de valider l'hypothèse initiale selon laquelle le transfert de chaleur s'effectue depuis le cœur des particules de TiB_2 vers l'extérieur du composite (PEHD/ TiB_2), conformément aux gradients thermiques appliqués.

4.5. Formalisme théorique

La détermination des résistances thermiques conductives du renfort, de la matrice et de l'interface repose sur l'application de la loi de Fourier, qui modélise le transfert de chaleur par conduction comme étant proportionnel au gradient de température et à la conductivité thermique intrinsèque du matériau.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

4.5.1. Flux thermique

Le flux thermique, ϕ_{th} , est une grandeur physique qui représente la quantité d'énergie thermique, Q , traversant une surface donnée par unité de temps, généralement exprimée en watts (W) [8] :

$$\phi_{th} = \frac{dQ}{dt} \quad (4.1)$$

4.5.2. Résistance thermique

La résistance thermique traduit l'aptitude d'un matériau à limiter les échanges de chaleur, qu'il s'agisse de chaleur entrante ou sortante. Elle est généralement caractérisée par l'indice R_{th} , exprimé en Kelvin/Watt (K/W). Plus cette valeur est élevée, plus le matériau présente de bonnes propriétés isolantes [8].

$$R_{th} = \frac{\Delta T}{\phi_{th}} = \frac{(T_1 - T_2)}{\phi_{th}} \quad (4.2)$$

4.5.2.1. Résistance thermique par conduction au sein du renfort

Dans un premier temps, la loi de Fourier est appliquée au cas de particules cylindriques afin de déterminer la résistance thermique ainsi que le flux thermique conducteur au sein du renfort. Cette loi exprime le flux thermique en fonction du gradient de température et des propriétés thermiques du matériau. Dans le cas d'une géométrie cylindrique, l'expression du flux thermique par conduction est donnée par la relation suivante [10] :

$$\phi_{thcond(r)} = -A \lambda_r \frac{dT}{dr} \quad (4.3)$$

Dans laquelle les quantités $\phi_{thcond(r)}$, λ_r et $\frac{dT}{dr}$ représentent respectivement le Flux thermique conductive du renfort en (W), la conductivité thermique du renfort (W/m.K) et le gradient radial de température (où T désigne la température en (K) et r est le rayon radial en (m)). Tandis que A représente la surface d'échange thermique en (m^2), pour un matériau composite de forme cylindrique, sa surface est donnée par la relation suivante: $A=2\pi rL$, avec L est la longueur du cylindre (m).

L'expression du flux thermique devient alors [10]:

$$\phi_{thcond(r)} = -2\pi rL\lambda_r \frac{dT}{dr} \quad (4.4)$$

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

L'intégration de l'équation (4.4) entre les bornes r_1 et r permet d'obtenir [10] :

$$\phi_{thcond(r)} \int_{r_1}^r \frac{dr}{r} = -2\pi L \lambda_r \int_{T_1}^{T_2} dT \quad (4.5)$$

Ce qui donne finalement:

$$\phi_{thcond(r)} = 2\pi L \lambda_r \frac{(T_1 - T_2)}{\ln(r/r_1)} \quad (4.6)$$

La résistance thermique conductive du renfort est définie comme le rapport de la différence de température et le flux thermique:

$$R_{thcond(r)} = \frac{(T_1 - T_2)}{\phi_{cond(r)}} \quad (4.7)$$

Où $R_{thcond(r)}$ désigne la résistance thermique conductive de renfort.

La substitution de l'équation (4.6) dans l'équation (4.7) donne le résultat suivant:

$$R_{thcond(r)} = \frac{\ln(r/r_1)}{2\pi L \lambda_r} \quad (4.8)$$

4.5.2.2. Résistance thermique par conduction à travers l'interface

En considérant que l'interface entre le renfort et la matrice est constituée d'une couche cylindrique d'épaisseur δ et de conductivité thermique λ_i , la loi de Fourier est appliquée afin de déterminer le flux thermique conductif à travers cette région interfaciale. Dans le cas d'une géométrie cylindrique, l'expression du flux thermique s'écrit :

$$\phi_{thcond(i)} = -2\pi r L \lambda_i \frac{dT}{dr} \quad (4.9)$$

En intégrant cette relation sur le domaine radial compris entre r et $r+\delta$, correspondant respectivement aux limites interne et externe de la couche interfaciale, et entre les températures T_1 et T_2 , on obtient :

$$\phi_{thcond(i)} \int_r^{r+\delta} \frac{dr}{r} = -2\pi L \lambda_i \int_{T_1}^{T_2} dT \quad (4.10)$$

Ce qui conduit à l'expression suivante du flux thermique interfacial :

$$\phi_{thcond(i)} = 2\pi L \lambda_i \frac{(T_1 - T_2)}{\ln\left(\frac{r+\delta}{r}\right)} \quad (4.11)$$

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

La résistance thermique conductive de l'interface est alors définie par :

$$R_{thcond(i)} = \frac{\ln\left(\frac{r+\delta}{r}\right)}{2\pi L\lambda_i} \quad (4.12)$$

Lorsque l'épaisseur de la couche interfaciale est négligeable devant le rayon radial ($\delta \ll r$), le terme logarithmique peut être approché, ce qui conduit à l'expression simplifiée suivante :

$$R_{thcond(i)} = \frac{\delta}{2\pi r L\lambda_i} \quad (4.13)$$

Cette relation met en évidence que la présence d'une couche d'air à l'interface introduit une résistance thermique supplémentaire significative, en raison de la faible conductivité thermique de l'air, ce qui peut fortement affecter les mécanismes de transfert de chaleur dans le composite.

4.5.2.3. Résistance thermique par conduction dans la matrice

En appliquant de nouveau la loi de Fourier pour déterminer la résistance thermique conductrice au sein de la matrice polymère, et en procédant de manière analogue aux équations (4.3) à (4.5), l'intégration sur le domaine radial compris entre r et r_2 conduit à l'expression suivante du flux thermique [10] :

$$\phi_{thcond(m)} = \frac{2\pi L\lambda_m (T_1 - T_2)}{\ln(r_2/r)} \quad (4.14)$$

La résistance thermique conductive de la matrice est alors:

$$R_{thcond(m)} = \frac{(T_1 - T_2)}{\phi_{thcond(m)}} = \frac{\ln(r_2/r)}{2\pi L\lambda_m} \quad (4.15)$$

4.6. Résultats et discussions

Cette section est consacrée à la présentation et à l'analyse des résultats obtenus à partir de l'approche théorique adoptée pour l'étude du transfert thermique dans le composite considéré. L'objectif est d'examiner l'effet du rayon radial sur l'évolution des résistances thermiques et des flux thermiques conductifs dans les différentes régions du matériau, notamment le renfort, l'interface et la matrice. L'exploitation des représentations graphiques permet ainsi de mettre en évidence l'influence des paramètres géométriques sur les mécanismes de conduction thermique et d'évaluer leur contribution aux performances thermiques globales du composite.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

4.6.1. Influence du rayon radial r sur la résistance thermique par conduction au sein du renfort TiB_2

Afin de mettre en évidence l'effet du rayon radial r sur la résistance thermique par conduction au sein du renfort TiB_2 , il nous a apparu judicieux de réécrire son expression comme suit [10] :

$$R_{thcond(\text{TiB}_2)} = \frac{\ln(r/r_1)}{2\pi L \lambda_{\text{TiB}_2}} \quad (4.16)$$

La figure 4.8 illustre l'évolution de la résistance thermique par conduction du renfort en fonction du rayon radial r . L'analyse de cette figure montre que cette résistance augmente progressivement avec l'accroissement du rayon radial. Ce comportement est en accord avec l'expression analytique de la résistance thermique cylindrique, selon laquelle la résistance varie logarithmiquement avec le rayon. Ainsi, lorsque le rayon augmente, le trajet radial parcouru par le flux thermique devient plus important, ce qui accroît la résistance au transfert de chaleur à travers le renfort.

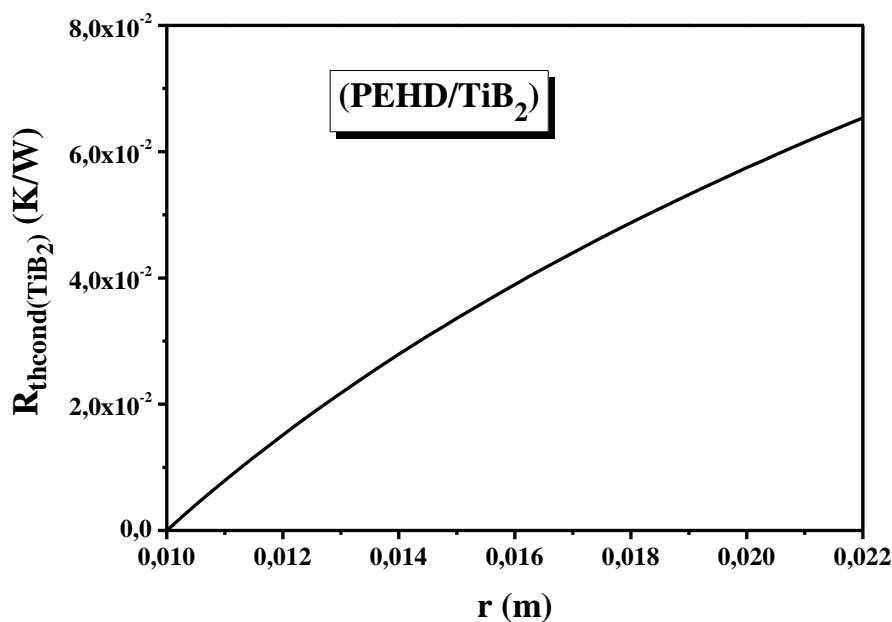


Fig. 4.8. Variation de la résistance thermique par conduction au sein du renfort TiB_2 , $R_{thcond(\text{TiB}_2)}$, en fonction du rayon radial, r , pour le matériau composite (PEHD/ TiB_2).

Ces résultats mettent en évidence l'influence significative de la géométrie radiale sur les mécanismes de conduction thermique au sein du renfort. Une augmentation de la résistance thermique du renfort peut limiter la propagation de la chaleur dans le composite, ce qui affecte

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

les performances thermiques globales du matériau. Les tendances observées confirment ainsi que le rayon radial constitue un paramètre géométrique important dans l'optimisation du transfert thermique dans les composites.

4.6.2. Influence du rayon radial r sur la résistance thermique par conduction à travers l'interface air

Dans le cadre de l'analyse de l'influence du rayon radial r sur la résistance thermique du matériau composite (PEHD/TiB₂), l'interface séparant la matrice du renfort a été modélisée comme un espace rempli d'un fluide immobile, tel que l'air d'épaisseur $\delta=10^{-6}$ m. Cette approche vise à mettre en évidence l'existence d'une résistance thermique significative en présence d'une interface imparfaite, et à quantifier les effets sur les performances globales du composite.

La résistance thermique de l'interface air est donnée par :

$$R_{thcond(air)} = \frac{\delta}{2\pi r L \lambda_{air}} \quad (4.17)$$

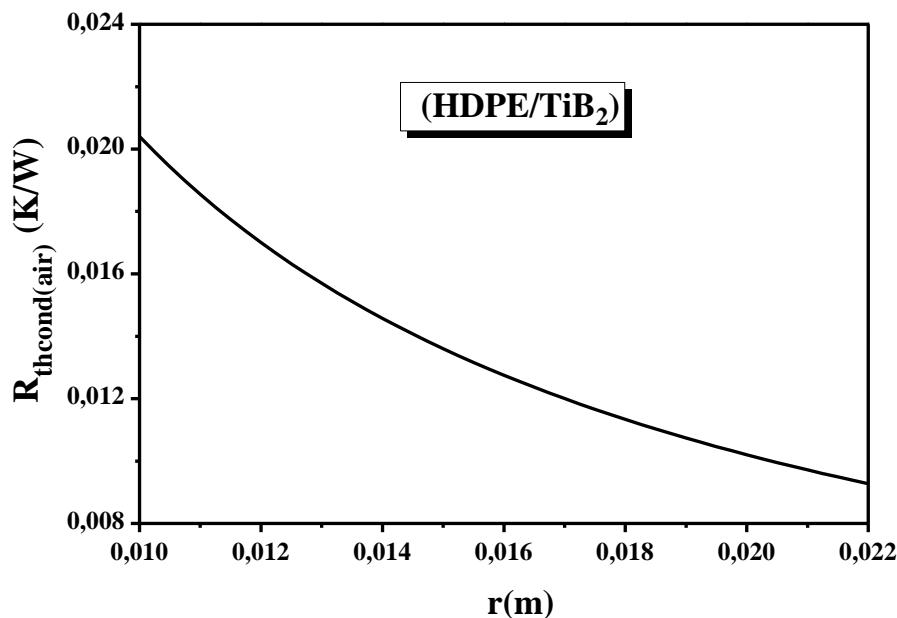


Fig. 4.9. Variation de la résistance thermique par conduction à travers l'interface air, $R_{thcond(air)}$, en fonction du rayon radial, r , pour le matériau composite (PEHD/TiB₂).

La figure 4.9 présente l'évolution de la résistance thermique par conduction à travers l'interface air en fonction du rayon radial r . Contrairement au comportement observé dans le renfort, la

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

résistance thermique interfaciale diminue progressivement lorsque le rayon radial augmente. Cette évolution est cohérente avec l'expression analytique de la résistance interfaciale, qui montre une dépendance inverse avec le rayon radial.

En effet, l'augmentation du rayon radial s'accompagne d'une augmentation de la surface d'échange thermique à l'interface, ce qui réduit la résistance au passage du flux thermique entre le renfort et la matrice. Cette diminution de la résistance interfaciale favorise ainsi le transfert thermique conductif au sein du composite. Ces résultats mettent en évidence l'importance du rayon radial dans l'optimisation des propriétés thermiques conductives des matériaux composites, en particulier au niveau des zones interfaciales qui jouent un rôle déterminant dans les mécanismes de transfert de chaleur.

4.6.3. Influence du rayon radial r sur la résistance thermique par conduction dans la matrice PEHD

S'agissant du matériau composite (PEHD/ TiB_2), la résistance thermique conductive de la matrice PEHD est donnée par :

$$R_{thcond(PEHD)} = \frac{\ln(r_2/r)}{2\pi L \lambda_{PEHD}} \quad (4.18)$$

Afin d'identifier l'effet du rayon radial r sur la résistance thermique par conduction dans la matrice polymère en polyéthylène haute densité (PEHD), la figure 4.10 présente l'évolution de la quantité $R_{thcond(PEHD)}$ en fonction de r .

L'analyse de cette figure met en évidence une diminution progressive de la résistance thermique lorsque le rayon radial augmente. Cette évolution est conforme à l'expression analytique de la résistance thermique cylindrique dans la matrice, selon laquelle la résistance décroît lorsque le rayon r se rapproche du rayon externe r_2 .

Physiquement, cette diminution s'explique par la réduction de l'épaisseur radiale de matrice traversée par le flux thermique. Lorsque le rayon augmente, le chemin de conduction dans la matrice devient plus court, ce qui réduit la résistance au transfert de chaleur. Ces résultats montrent que la géométrie radiale influence directement les performances thermiques de la matrice et joue un rôle important dans l'optimisation du transfert thermique global au sein du composite.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

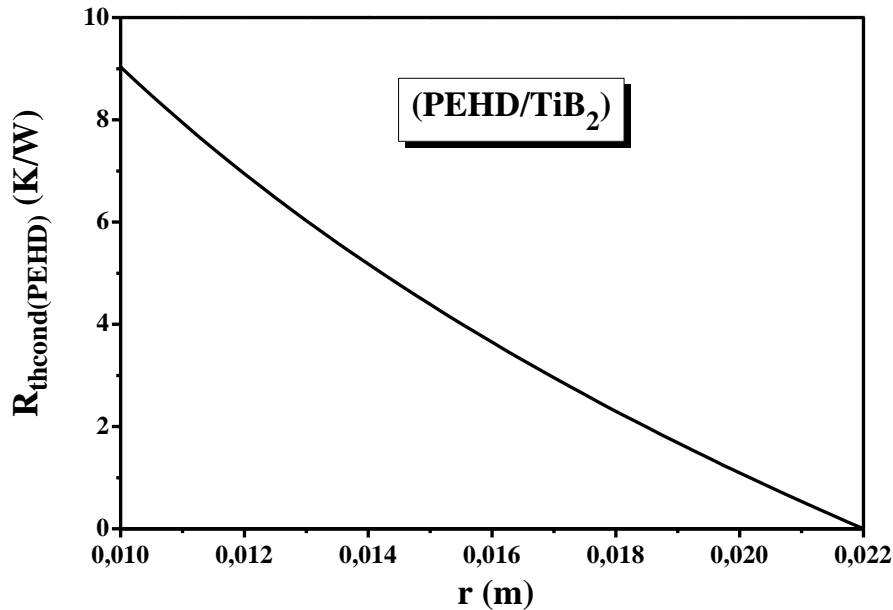


Fig. 4.10. Variation de la résistance thermique par conduction dans la matrice, $R_{thcond(PEHD)}$, en fonction du rayon radial, r , pour le matériau composite (PEHD/TiB₂).

4.6.4. Influence du rayon radial r sur la résistance thermique totale du composite (PEHD/TiB₂)

Afin de quantifier l'effet du rayon radial r sur les différents mécanismes de transfert thermique au sein du matériau composite (PEHD/TiB₂), la résistance thermique totale $R_{th(PEHD/TiB_2)_{totale}}$ peut être définie comme la somme des trois contributions principales :

$$R_{th(PEHD/TiB_2)_{totale}} = R_{thcond(TiB_2)} + R_{thcond(air)} + R_{thcond(PEHD)} \quad (4.19)$$

Ainsi, l'expression générale s'écrit :

$$R_{th(PEHD/TiB_2)_{totale}} = \frac{\ln(r/r_1)}{2\pi L\lambda_{TiB_2}} + \frac{\delta}{2\pi r L\lambda_{air}} + \frac{\ln(r_2/r)}{2\pi L\lambda_{PEHD}} \quad (4.20)$$

Cette équation permet d'évaluer l'évolution globale de la résistance thermique en fonction du rayon r , en tenant compte des propriétés thermiques et géométriques de chaque composant du composite.

La figure 4.11 représente l'évolution de la résistance thermique totale du composite (PEHD/TiB₂) en fonction du rayon radial r . L'analyse de cette figure met en évidence une diminution progressive de la résistance thermique totale lorsque le rayon radial augmente, ce qui traduit une amélioration du transfert thermique global au sein du composite.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

Ce comportement résulte de l'effet combiné des différentes résistances thermiques constituant le système. En effet, bien que la résistance thermique du renfort augmente avec le rayon radial, les résistances thermiques de l'interface et de la matrice diminuent de manière plus significative, ce qui conduit à une réduction globale de la résistance thermique totale.

Ces résultats montrent que la géométrie radiale joue un rôle important dans les performances thermiques du composite, en influençant directement les mécanismes de conduction dans les différentes phases du matériau. L'augmentation du rayon radial favorise ainsi le transfert thermique à travers le composite, mettant en évidence l'importance du contrôle géométrique dans l'optimisation des propriétés thermiques des matériaux composites renforcés.

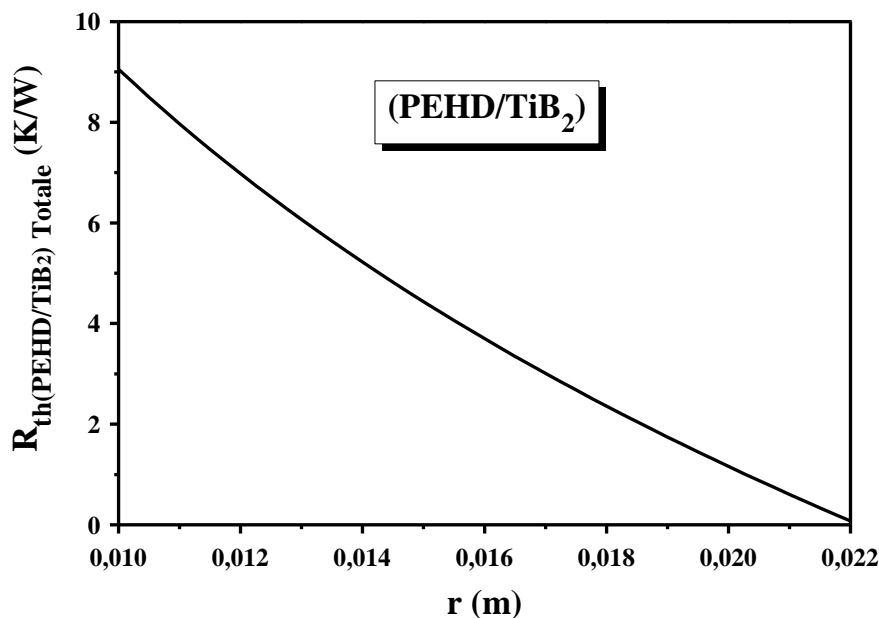


Fig. 4.11. Variation de la résistance thermique totale, $R_{th(PEHD/TiB_2)_{totale}}$, en fonction du rayon radial, r , pour le matériau composite (PEHD/TiB₂).

4.6.5. Influence du rayon radial r sur le transfert thermique par conduction au sein du renfort TiB₂

Comme mentionné précédemment, cette section examine l'effet du rayon radial r sur le transfert thermique par conduction à travers le renfort du composite (PEHD/TiB₂). Le flux thermique conductif, défini comme la quantité de chaleur transférée par unité de temps, est étudié ici dans le cadre d'un régime stationnaire sans pertes thermiques. Dans ce contexte, les propriétés thermophysiques utilisées dans les expressions analytiques sont supposées constantes quelle que soit la variation du rayon radial.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

L'expression du flux thermique conductif dans le renfort, de forme cylindrique, est donnée par :

$$\phi_{thcond(TiB_2)} = \frac{2\pi L \lambda_{TiB_2} (T_1 - T_2)}{\ln(r/r_1)} \quad (4.21)$$

La figure 4.12 présente l'évolution du flux thermique conductif au sein du renfort en fonction du rayon radial r . Les résultats obtenus montrent qu'une augmentation du rayon radial entraîne une diminution progressive du flux thermique transmis par conduction à travers le renfort. Ce comportement est cohérent avec l'expression analytique du flux thermique dans une géométrie cylindrique, où l'augmentation du rayon radial accroît le trajet de conduction thermique, ce qui augmente la résistance thermique du renfort et réduit par conséquent le flux de chaleur transféré. Ces résultats mettent en évidence l'influence de la géométrie radiale du renfort sur le transfert thermique au sein du composite. Ainsi, l'augmentation du rayon radial limite progressivement l'efficacité du transfert thermique par conduction dans le renfort, comme l'illustre la tendance décroissante observée sur la figure 4.12.

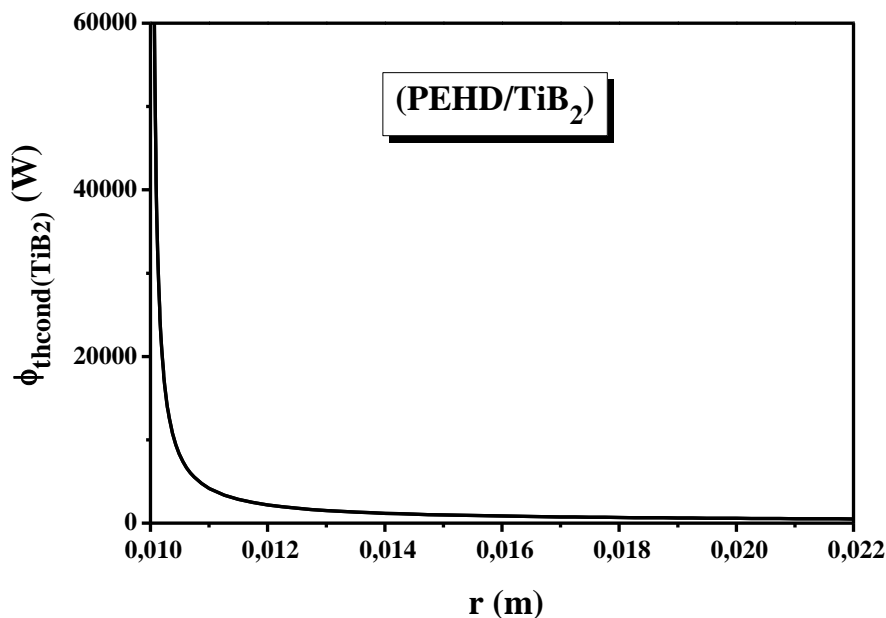


Fig.4.12 . Variation du flux thermique par conduction au sein du renfort, $\phi_{thcond(TiB_2)}$, en fonction du rayon radial, r , pour le matériau composite (PEHD/TiB₂).

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

4.6.6. Influence du rayon radial r sur le transfert thermique par conduction à travers l'interface air

De la même manière que précédemment, nous allons traiter l'influence du rayon radial r sur le transfert de chaleur convectif du matériau composite (PEHD/TiB₂). Cette grandeur physique est donné par :

$$\phi_{thcond(air)} = \frac{2\pi L r \lambda_{air} (T_1 - T_2)}{\delta} \quad (4.22)$$

La figure 4.13 représente l'évolution du flux thermique conductif à travers l'interface air en fonction du rayon radial r . Les résultats obtenus mettent en évidence une augmentation progressive du flux thermique lorsque le rayon radial augmente. Cette évolution traduit l'effet de l'augmentation de la surface d'échange thermique, qui favorise le transfert de chaleur par conduction entre le renfort et la matrice polymère.

L'analyse de cette figure montre que l'interface joue un rôle essentiel dans le transfert thermique au sein du composite. En effet, l'augmentation du rayon radial améliore le passage du flux thermique à travers l'interface en réduisant la résistance thermique interfaciale, ce qui contribue à une meilleure performance thermique globale du matériau.

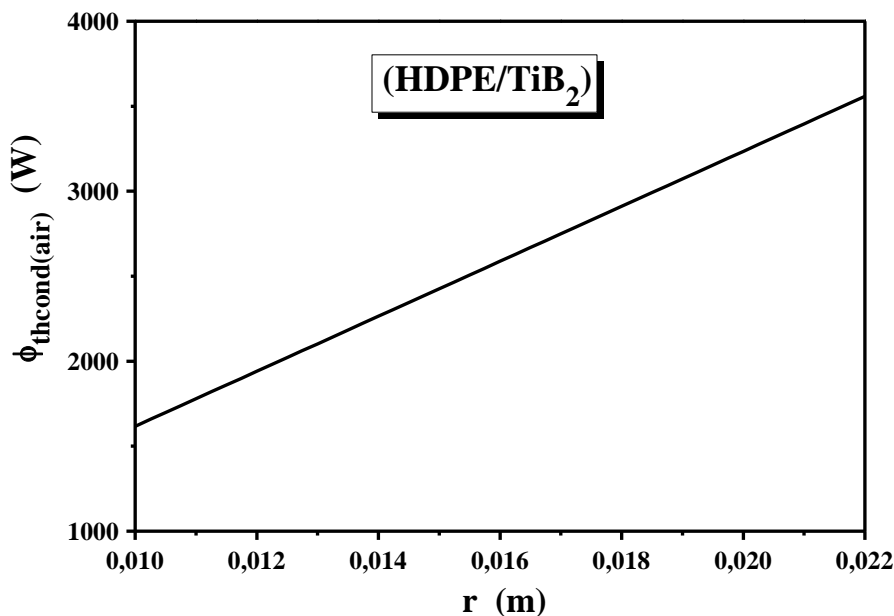


Fig. 4.13. Variation du flux thermique par conduction à travers l'interface air, $\phi_{thcond(air)}$, en fonction du rayon radial, r , pour le matériau composite (PEHD/ TiB₂).

Par ailleurs, ces résultats confirment que la géométrie radiale de l'interface influence directement les mécanismes de conduction thermique entre les différentes phases du composite.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

Les tendances observées sur la figure 4.13 mettent ainsi en évidence le rôle déterminant de l'interface dans l'optimisation du transfert thermique dans les matériaux composites (PEHD/TiB₂).

4.6.7. Influence du rayon radial r sur le transfert thermique par conduction dans la matrice PEHD

Dans cette étude, l'attention est portée sur l'influence du rayon radial sur le transfert thermique par conduction au sein de la matrice du composite (PEHD/TiB₂); dont l'expression est formulée comme suit:

$$\phi_{thcond(PEHD)} = \frac{2\pi L \lambda_{PEHD} (T_1 - T_2)}{\ln(r^2/r)} \quad (4.23)$$

Comme l'illustre la figure 4.14, le flux thermique conductif au sein de la matrice varie en fonction du rayon radial r . Contrairement au comportement observé dans le renfort, une augmentation progressive du flux thermique dans la matrice est observée lorsque le rayon radial augmente. Il convient de noter que le signe négatif du flux thermique indique que le transfert de chaleur s'effectue dans le sens opposé au gradient de température, conformément à la loi de Fourier.

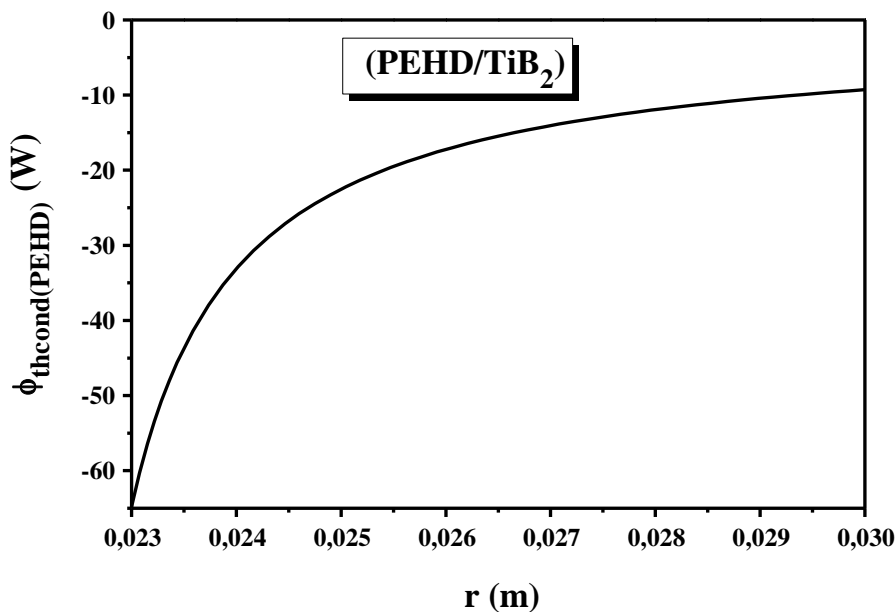


Fig. 4.14. Variation du flux thermique par conduction dans la matrice, $\phi_{thcond(PEHD)}$, en fonction du rayon radial, r , pour le matériau composite (PEHD/TiB₂).

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

Cette évolution s'explique par la diminution de la résistance thermique de la matrice lorsque le rayon radial augmente. En effet, l'augmentation de r réduit l'épaisseur radiale de matrice traversée par le flux thermique, ce qui diminue la résistance au transfert de chaleur et favorise ainsi l'augmentation du flux thermique conductif.

Ces résultats mettent en évidence le rôle important de la géométrie radiale dans les mécanismes de conduction thermique au sein de la matrice polymère. Ils montrent également que la réduction du chemin de conduction dans la matrice contribue à l'amélioration des performances thermiques globales du composite.

4.6.8. Influence du rayon radial r sur le transfert thermique total du composite (PEHD/TiB₂)

Dans le cadre de la modélisation radiale du transfert thermique au sein du composite (PEHD/TiB₂), en considérant un renfort de géométrie cylindrique entouré d'une matrice polymère, et en prenant en compte une interface imparfaite entre ces deux phases, l'expression du flux thermique total $\phi_{th(PEHD/TiB_2)_{total}}$ peut être établie à partir de l'analogie thermique des résistances en série. Cette modélisation repose sur trois contributions principales : la conduction thermique dans le renfort, à l'interface, et dans la matrice.

L'expression du flux thermique total s'écrit comme suit :

$$\phi_{th(PEHD/TiB_2)_{total}} = \frac{T_1 - T_2}{R_{thcond(TiB_2)}} + \frac{T_1 - T_2}{R_{thcond(air)}} + \frac{T_1 - T_2}{R_{thcond(PEHD)}} \quad (4.24)$$

Ou encore :

$$\phi_{th(PEHD/TiB_2)_{total}} = 2\pi L(T_1 - T_2) \left[\frac{\lambda_{TiB_2}}{\ln(r/r_1)} + \frac{r\lambda_{air}}{\delta} + \frac{\lambda_{PEHD}}{\ln(r_2/r)} \right] \quad (4.25)$$

La figure 4.15 présente l'évolution du flux thermique total dans le matériau composite (PEHD/TiB₂) en fonction du rayon radial r . Les résultats obtenus montrent qu'une augmentation du rayon radial entraîne une augmentation progressive du flux thermique total traversant le composite.

Cette évolution s'explique par la diminution de la résistance thermique totale du matériau lorsque le rayon radial augmente. En effet, bien que la résistance thermique du renfort augmente avec r , les résistances thermiques de l'interface et de la matrice diminuent de manière plus

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

importante, ce qui conduit à une réduction globale de la résistance thermique totale. Par conséquent, le flux thermique total augmente conformément à la relation inverse entre le flux thermique et la résistance thermique totale.

Ces résultats mettent en évidence l'influence significative de la géométrie radiale sur les performances thermiques globales du composite. Ils montrent qu'une augmentation du rayon radial favorise le transfert thermique à travers les différentes phases du matériau, ce qui souligne l'importance du contrôle géométrique dans l'optimisation des propriétés thermiques des composites à matrice polymère renforcée.

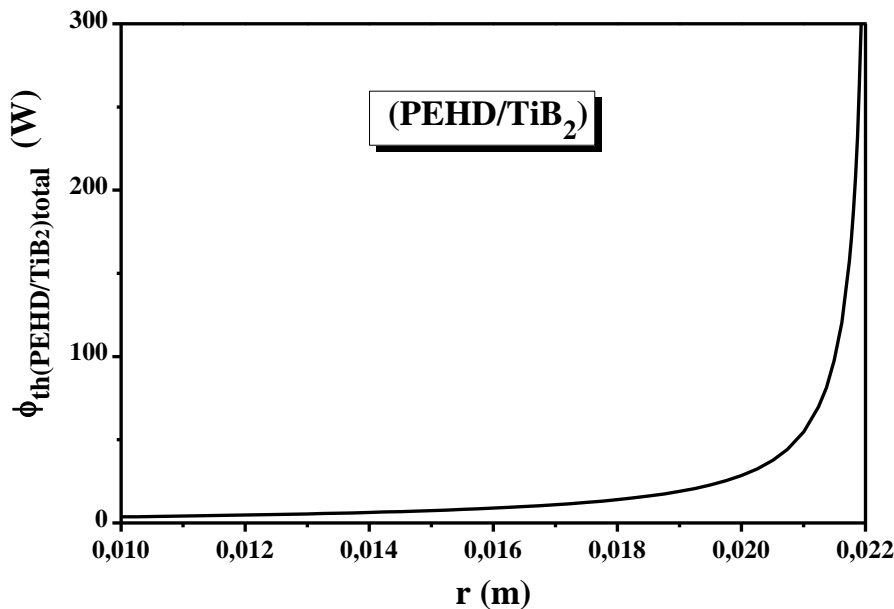


Fig. 4.15. Variation du flux thermique total, $\phi_{th(PEHD/TiB_2)_{total}}$, en fonction du rayon radial, r , pour le matériau composite (PEHD/TiB₂).

4.7. Conclusion

L'étude du transfert thermique au sein du composite cylindrique (PEHD/TiB₂), menée à travers une approche combinant simulation numérique sous COMSOL Multiphysics et modélisation théorique basée sur la loi de Fourier, a permis de mettre en évidence l'influence déterminante du rayon radial sur les mécanismes de conduction thermique dans les différentes phases du matériau composite.

La simulation numérique a permis de visualiser la répartition des flux thermiques et des gradients de température au sein du renfort, de l'interface et de la matrice, mettant en évidence

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

le rôle essentiel de la géométrie radiale dans la distribution du transfert thermique. En complément, l'analyse théorique a permis d'établir les expressions analytiques des résistances thermiques et des flux conductifs dans les différentes régions du composite, offrant ainsi une interprétation quantitative des phénomènes observés numériquement.

Les résultats obtenus montrent que l'augmentation du rayon radial entraîne une augmentation de la résistance thermique au niveau du renfort, tandis que les résistances thermiques de l'interface et de la matrice diminuent progressivement. L'effet combiné de ces variations conduit à une diminution de la résistance thermique totale du composite, accompagnée d'une augmentation du flux thermique global traversant le matériau. Ces observations traduisent une amélioration du transfert thermique global lorsque le rayon radial augmente.

Cette étude met ainsi en évidence l'importance du contrôle des paramètres géométriques dans l'optimisation des performances thermiques des composites à matrice polymère renforcée. En particulier, la maîtrise de la géométrie radiale apparaît comme un facteur clé pour réduire les résistances thermiques internes et favoriser une dissipation thermique plus efficace.

Les résultats obtenus présentent un intérêt pratique pour la conception de matériaux composites destinés à des applications nécessitant une gestion thermique performante, notamment dans les domaines de l'électronique, de l'ingénierie thermique et des matériaux fonctionnels.

En définitive, cette approche combinée entre simulation numérique et modélisation théorique constitue un cadre pertinent pour analyser et optimiser le comportement thermique des matériaux composites, tout en ouvrant des perspectives intéressantes pour le développement de structures composites à hautes performances thermiques.

Chapitre 4. Influence de la morphologie des particules sur les processus d'échange de chaleur dans les composites à matrice polymère

4.8. Références

- [1] M. Chauvin, B. Lascoup, "Contribution à la conductivité thermique d'un matériau composite" *Comptes Rendus des JNC 17 - Poitiers* **2011**, p. 1-2.
- [2] E. Chapelle "Analyse de la résistance thermique d'interface entre inclusion et matrice dans les matériaux composites bons conducteurs de chaleur : application aux matériaux composites à matrice polymère ou métallique" *Thèse de Doctorat*, Université de Nantes, France, 2008.
- [3] S. Bensaada, M. T. Bouziane "Transfert de chaleur" *Cours*, Université de Biskra, Algérie. <https://www.univ-biskra.dz/enseignant/bensaada/Transfert%20de%20chaleur.pdf>
- [4] S. Mergui, "Transferts thermiques" *Cours thermique L2*, Chapitre 1, Sorbonne Universités. http://www.fast.u-psud.fr/~mergui/2A101/cours_thermique_L2.pdf
- [5] "Th9-Conduction thermique" *Cours*, Lycée le Dantec, France. https://ats.leboulch.bzh/cours/Th9_site.pdf
- [6] "Chapitre 2 : Transfert de chaleur par conduction" *Cours*, Université de Eloued, Algérie. https://elearning.univ-eloued.dz/pluginfile.php/44450/mod_resource/content/1/CHAPITRE%20II.pdf
- [7] T. Ouksel, "Cours Transfert Thermique" *Cours*, Université de Oum El Bouaghi, Algérie, 2017.
- [8] A. Lemtenneche, T. Bouguennour, "Etude expérimentale des transferts thermiques dans un local muni d'un isolant à base végétale" *Mémoire de master*, Université d'Ouargla, Algérie, 2017.
- [9] Y. A. Çengel, A. J. Ghajar, "Heat and Mass Transfer: Fundamentals and Applications", Chapter 1: Introduction and Basic Concepts, McGraw-Hill Education, New York, 2020.
- [10] C. Saint-Blanquet, B. Fourcher, "Conduction de la chaleur" *Cours*, Université de Nantes, France. https://www.sciences.univ-nantes.fr/sites/claude_saintblanquet/conducti/11intro/11intro.htm
- [11] Cibles de pulvérisation en diborure de titane. <https://www.plansee.com/fr/produits/cibles-de-pulverisation-en-diborure-de-titane.html>
- [12] R. Munro, "Material Properties of Titanium Diboride" *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology* **2000**, 105, 709-720.
- [13] I. Krupa, I. Novak, I. Chodak, "Electrically and thermally conductive polyethylene/graphite composites and their mechanical properties" *Synthetic Metals* **2004**, 145(2-3), 245-252.
- [14] "Polyéthylène" L'Élémentarium, 2024. <https://lelementarium.fr/product/polyethylene/>

CHAPITRE 5

**Comportement Électrique des
Nano-Composites à Matrice
Polymère : Cas des Systèmes
(PS/Gn) et (PVDF/Gn)**

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

5.1. Introduction

Les matériaux nanocomposites à matrice polymère suscitent un intérêt croissant en raison de leurs propriétés électriques exceptionnelles, qui les rendent adaptés à de nombreuses applications technologiques avancées. En intégrant des nanoparticules conductrices, telles que les nano-feuillets de graphène, ces composites offrent une combinaison unique de légèreté, de flexibilité et de conductivité. Cependant, la performance électrique de ces matériaux dépend de plusieurs paramètres clés, notamment la fraction volumique des charges [1], l'épaisseur de la matrice polymère et le seuil de percolation [2].

Le seuil de percolation représente un point critique à partir duquel un réseau conducteur continu se forme au sein du matériau, transformant la matrice d'un état isolant à un état conducteur comme le montre la figure 5.1. Ce phénomène peut être observé avec des concentrations de nanoparticules aussi faibles que 1 à 5%, ce qui illustre la grande efficacité des charges conductrices comme le graphène [1]. Parallèlement, l'épaisseur de la phase matricielle entre les nanoparticules joue également un rôle essentiel, car une distance plus faible favorise une meilleure dispersion des nanoparticules et réduit le chemin de conduction des charges électriques [2]. Ces deux facteurs combinés influencent directement la capacité du matériau à conduire l'électricité.

Le calcul théorique de la conductivité électrique des nanocomposites à base de polymères est influencé par plusieurs facteurs clés tels que la nature et la concentration des charges conductrices, comme, par exemple, les nanoparticules métalliques ou les nanotubes de carbone, jouent un rôle crucial, car elles déterminent la voie de conduction et la densité de courant. Un autre facteur indispensable qui influence la conductivité électrique des nanocomposites est celui de la morphologie et la distribution des charges au sein de la matrice polymère qui affectent la connectivité entre les particules conductrices, ce qui peut améliorer ou diminuer la conductivité. De plus, les propriétés intrinsèques du polymère, telles que sa permittivité et sa structure moléculaire, influencent également le transport des charges. Sans oublier les conditions environnementales, comme la température et l'humidité, qui peuvent modifier les interactions entre les composants du nanocomposite, impactant ainsi la conductivité globale. Ces facteurs combinés doivent être soigneusement pris en compte pour obtenir des estimations précises de la conductivité électrique des nanocomposites.

Afin de mieux appréhender le comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère, une première estimation de la conductivité électrique effective a été réalisée à l'aide

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

du modèle classique des bornes de Wiener. Ce modèle, bien que simplifié, permet d'encadrer théoriquement les performances électriques du système en considérant les configurations limites de distribution des phases conductrice (nanoparticules) et isolante (matrice polymère). Toutefois, en raison des spécificités des nanocomposites, notamment la dimension nanométrique des charges, les effets d'interface et les phénomènes de percolation, ce modèle se révèle insuffisant pour décrire avec précision les mécanismes de conduction mis en jeu.

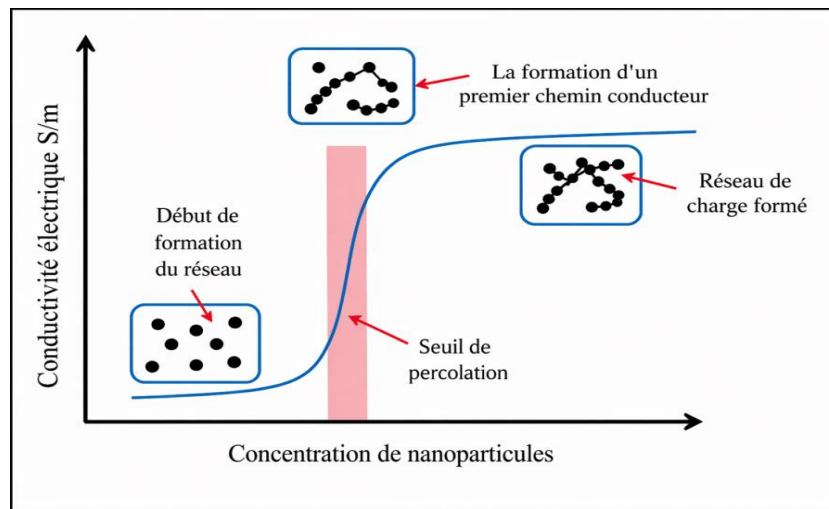


Fig. 5.1. Variation de la conductivité électrique en fonction de la concentration de nanoparticules (Principe de seuil de percolation) [3].

Pour cette raison, l'étude a été approfondie en recourant au modèle semi-empirique de Deng et Zheng, mieux adapté aux composites à base de nanoparticules. Ce modèle intègre notamment l'effet de la géométrie des nano-feuillets, leur orientation, leur distribution ainsi que la conductivité interfaciale, offrant ainsi une meilleure représentation des propriétés électriques effectives des systèmes étudiés. L'application conjointe des deux modèles permet de comparer une prédiction théorique encadrée (Wiener) à une estimation plus réaliste (Deng-Zheng), mettant en évidence l'influence déterminante des paramètres microstructuraux sur la conductivité électrique globale des matériaux polystyrène/ graphène (PS/Gn) et polyfluorure de vinylidène/ graphène (PVDF/Gn).

Une autre grandeur physique d'intérêt abordée dans le présent travail est la résistivité électrique des matériaux nanocomposites sus-évoqués. Bien qu'elle soit l'inverse de la conductivité électrique, son étude reste pertinente en raison des informations complémentaires qu'elle fournit sur le comportement électrique du matériau. En effet, la résistivité électrique d'un

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

matériau est un nombre qui décrit à quel point ce matériau résiste au passage de l'électricité. Cette quantité physique est influencée par plusieurs facteurs, leurs optimisant permet de concevoir des nanocomposites avec des propriétés électriques adaptées à des applications spécifiques, telles que l'électronique, les capteurs ou les dispositifs de stockage d'énergie.

5.2. Les modèles analytiques

Les modèles analytiques jouent un rôle crucial dans la prédiction de la conductivité électrique des nano-composites à matrice polymère, en permettant une compréhension approfondie des mécanismes de transport électronique et de percolation. Ces matériaux composites, constitués d'une matrice polymère isolante et de charges conductrices, comme des nanoparticules ou des fibres de carbone, présentent une conductivité fortement influencée par la nature, la taille, la concentration et la distribution spatiale des charges. Les modèles analytiques offrent des outils pour relier ces paramètres structurels aux propriétés électriques globales, en s'appuyant sur des concepts comme la théorie de la percolation et les modèles de mélange. Ces approches permettent non seulement d'accélérer la conception de matériaux optimisés pour des applications spécifiques, mais aussi de réduire la dépendance aux essais expérimentaux coûteux et chronophages. D'autres approches incluent le modèle de Maxwell-Garnett [4], qui est utilisé pour estimer la conductivité d'un composite en fonction des propriétés des composants individuels et de leur fraction volumique. Ce modèle est souvent appliqué lorsque les nanoparticules sont considérées comme des inclusions dans un milieu homogène. En outre, des modèles plus récents, tels que les simulations numériques et les approches basées sur la théorie des champs moyens, permettent d'explorer des configurations complexes et d'obtenir des prédictions plus précises en tenant compte des interactions entre les nanoparticules et la matrice polymère.

Dans ce qui va suivre, nous allons utiliser un modèle analytique utilisé pour prédire les propriétés électriques des matériaux à microstructure hétérogène. Ce modèle, souvent basé sur des formulations analytiques empiriques, se distingue par son simplicité d'utilisation. Les modèles les plus connus et les plus basiques sont ceux qui définissent les bornes de Wiener et les bornes de Hashin et Shtrikman appelées modèles d'encadrement, qui permettent de délimiter les propriétés électriques effectives [5]. Par ailleurs, notre étude repose sur le modèle théorique de Deng et Zheng [6], [7] qui prend en compte la structure, la composition et les interactions au sein du matériau. Ce modèle est essentiel pour guider le développement de nouveaux

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

nanocomposites aux propriétés électriques optimisées. Pour ce faire, nous traiterons l'influence de quelques facteurs sur la conductivité électrique des deux matériaux nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn) tels que la fraction volumique des nano-feuillets de graphène et l'influence de la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène.

Basé sur l'idée de percolation, un modèle de puissance a été développé pour calculer la conductivité électrique des nanocomposites à matrice polymère, [3], [8-10] qui sera élargi pour la détermination de la résistivité électrique de ces matériaux. En effet, ce modèle prend en considération l'impact de l'épaisseur α et de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène Φ_{Gn} ainsi que de l'épaisseur de l'interphase e .

5.2.1. Bornes de Wiener

Le modèle de Wiener est basé sur une approche statistique et est souvent utilisé pour des systèmes où la conductivité est dominée par un seul type de phase (conductrice, par exemple). Il est particulièrement adapté aux composites où une phase conductrice est dispersée dans une matrice non conductrice. En effet, ce modèle permet de prédire la conductivité électrique d'un composite isotrope (c'est-à-dire un matériau dont les propriétés sont les mêmes dans toutes les directions) à partir des conductivités des deux phases constitutives (la phase conductrice et la phase isolante). Il suppose que les phases sont dispersées de manière aléatoire et isolée, sans interaction complexe entre elles, ce qui en fait un modèle simplifié.

Pour un matériau composite hétérogène constitué de deux phases, une matrice de conductivité électrique σ_m et de fraction volumique Φ_m et des renforts de conductivité électrique σ_f avec une fraction volumique Φ_f , la conductivité électrique effective est alors encadrée par les limites suivantes :

$$\sigma_{Winf} \leq \sigma_{eff} \leq \sigma_{Wsup} \quad (5.1)$$

Les bornes inférieures et supérieures de la conductivité électrique effective d'un matériau composite sont données par [5] :

$$\sigma_{Winf} = \frac{1}{\frac{\Phi_f}{\sigma_f} + \frac{\Phi_m}{\sigma_m}} \quad (5.2)$$

$$\sigma_{Wsup} = \sigma_f \Phi_f + \sigma_m \Phi_m \quad (5.3)$$

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

La substitution de la fraction volumique de la matrice Φ_m par son expression $\Phi_m = 1 - \Phi_f$ dans les équations (5.2) et (5.3) donne :

$$\sigma_{Winf} = \frac{\sigma_f \sigma_m}{\sigma_m \Phi_f + \sigma_f (1 - \Phi_f)} \quad (5.4)$$

$$\sigma_{Wsup} = \sigma_f \Phi_f + \sigma_m (1 - \Phi_f) \quad (5.5)$$

Dans ces conditions, la conduction électrique effective du matériau composite s'exprime comme suit :

$$\frac{\sigma_f \sigma_m}{\sigma_m \Phi_f + \sigma_f (1 - \Phi_f)} \leq \sigma_{eff} \leq \sigma_f \Phi_f + \sigma_m (1 - \Phi_f) \quad (5.6)$$

5.2.2. Modèle de Deng et Zheng

Le modèle de Deng et Zheng [6], [7] a été proposé pour la prédiction de la conductivité électrique des matériaux nanocomposites repose sur une approche mathématique qui relie les propriétés des composants individuels à la conductivité globale du matériau composite. Ce modèle prend en compte divers facteurs, tels que la concentration des nanoparticules, leur distribution et leur interaction au sein de la matrice. En utilisant des équations linéaires, Deng et Zheng [6], [7] ont pu établir des relations quantitatives qui permettent de prédire comment les variations dans la composition et la structure des nanocomposites influencent leur conductivité électrique. Ce modèle est particulièrement utile pour concevoir des matériaux avec des propriétés électriques optimisées pour des applications spécifiques, en facilitant le choix des matériaux et des méthodes de fabrication.

Dans ces conditions, la conductivité électrique des matériaux nanocomposites est donnée par :

$$\sigma_c = \sigma_m + \frac{\sigma_f \Phi_N}{3} \quad (5.7)$$

Dans laquelle, σ_f représente la conductivité des nano-charges conductrices (charges de remplissage) et Φ_f leur fraction volumique. Il convient de noter que la fraction volumique du réseau conducteur pour un polymère/ graphène, Φ_N est exprimée comme suit [11], [12] :

$$\Phi_N = f \Phi_f \quad (5.8)$$

où la quantité f représente le pourcentage des nano-feuillets contribuant aux réseaux conducteurs, elle est donnée par la relation suivante [6], [7] :

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

$$f = \frac{\Phi_f^{\frac{1}{3}} - \Phi_p^{\frac{1}{3}}}{1 - \Phi_p^{\frac{1}{3}}} \quad (5.9)$$

avec Φ_p est la fraction volumique critique des nano-charges au seuil de percolation (représentant la fraction volumique minimale pour la formation d'un réseau conducteur).

Explicitement, l'expression de la fraction volumique des réseaux conducteurs dans le nanocomposite est déduite comme suit [7] :

$$\Phi_N = \frac{\Phi_f^{\frac{1}{3}} - \Phi_p^{\frac{1}{3}}}{1 - \Phi_p^{\frac{1}{3}}} \Phi_f \quad (5.10)$$

Dans ces conditions, l'expression de la conductivité électrique dans le matériau nano-composite est exprimée par :

$$\sigma_c = \sigma_m + \frac{\sigma_f \Phi_f \left(\Phi_f^{\frac{1}{3}} - \Phi_p^{\frac{1}{3}} \right)}{3 \left(1 - \Phi_p^{\frac{1}{3}} \right)} \quad (5.11)$$

5.2.3. Modèle de loi de puissance

La percolation est un phénomène qui décrit une transition brutale d'un état vers un autre. Dans le cas d'un composite de type polymère/ nano-charges conductrices un changement de comportement abrupt d'un état électrique isolant vers un état conducteur est observé. Le composite devient conducteur pour une concentration critique en nano-charges correspondant au seuil de percolation Φ_p . Cette concentration est la concentration minimale pour qu'il y ait la formation d'un chemin percolant. La formation d'un réseau de nano-charges conductrices à travers une matrice isolante conduit à un comportement conducteur (Figure 5.1).

La percolation d'un système conducteur a été étudiée par Kirkpatrick [13] puis Balberg [14] qui ont développé des modèles permettant de décrire le comportement de la conductivité électrique σ avec la géométrie des nano-charges et leur volume exclu associé sous la forme d'une loi de puissance [8] :

$$\sigma = \sigma_f (\Phi_f - \Phi_p)^b \quad \text{Pour } \Phi_f > \Phi_p \quad (5.12)$$

Dans laquelle, b désigne l'exposant critique associé aux phénomènes de transport qui dépend de la dimensionnalité du système. Cette loi n'est valable qu'au-delà du seuil de percolation.

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

❖ Seuil de percolation

La fraction volumique au seuil de percolation est défini par le rapport du volume du renfort V_f sur celui du composite V_c [10-12] :

$$\Phi_p = \frac{V_f}{V_c} = \frac{\frac{\pi D^2 \alpha}{4}}{[\cos^2 \theta (D + L)]^3} \quad (5.13)$$

où les quantités α , D , et L représentent respectivement l'épaisseur des charges de remplissage, leur diamètre et la longueur de tunnel. S'agissant des feuilles de graphite organisées aléatoirement en 3D dans les nanocomposites, l'équation (5.13) devient :

$$\Phi_p = \frac{27\pi D^2 \alpha}{4(D + L)^3} \quad (5.14)$$

Avec : $\cos^2 \theta = 1/3$ [10]. Par ailleurs, pour $D \gg L$, la fraction volumique au seuil de percolation se simplifie par [11], [12] :

$$\Phi_p = \frac{27\pi \alpha}{4D} \quad (5.15)$$

Il convient de préciser que l'équation (5.15), ne peut pas prendre en considération les effets de tunnel et d'interphase au début de la percolation. Les régions d'interphase se forment autour des deux côtés des charges de remplissage. De plus, des espaces de tunnel existent entre deux charges adjacentes.

❖ Incorporation des effets de tunnel et d'interphase

Afin de mettre en évidence les effets de tunnel et d'interphase sur la conductivité électrique (Voir la figure 5.2), le modèle est généralement modifié par un ajustement des quantités Φ_p et de la fraction volumique effective des charges de remplissage Φ_{eff} comme suit [8], [12] :

$$\Phi_p = \frac{27\pi \alpha}{4D + 2(\alpha + L)} \quad (5.16)$$

Il convient de préciser que, la relation finale de la fraction volumique au seuil de percolation Φ_p exprimée dans la référence [8] n'est plus une équation homogène, puisque les auteurs Y. Zare et al. [8] n'ont pas respecté la loi de dimension dans l'expression suivante :

$$\Phi_p = \frac{27\pi \alpha}{4D + 2(D\alpha + DL)} \quad (5.17a)$$

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

Par ailleurs, dans un autre travail, les auteurs Y. Zare et al. [11] ont donné une autre expression de la fraction volumique au seuil de percolation, Φ_p , différente à celle exprimée dans la référence [8] :

$$\Phi_p = \frac{27\pi\alpha^2}{4D\alpha + 2(De + DL)} \quad (5.17b)$$

où ils ont respecté la loi de dimension mais cette expression donne des valeurs très élevées de la fraction volumique Φ_p qui ne doit pas, en fait, dépassée la valeur de 0.1.

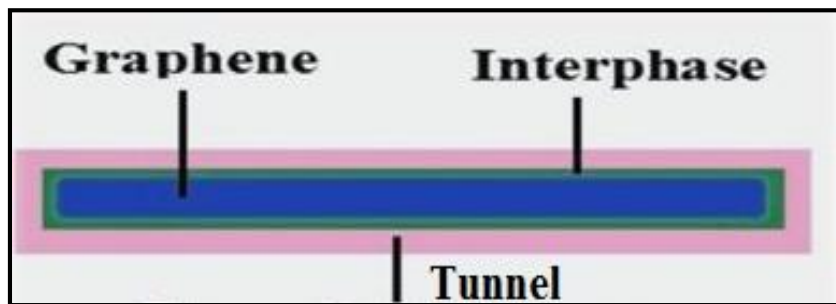


Fig. 5.2. Représentation schématique des régions d'interphase et de tunnel dans un échantillon [8].

❖ Fraction volumique effective des charges de remplissage

La fraction volumique effective des charges de remplissage Φ_{eff} dans les nanocomposites peut être suggéré par le contenu total de l'interphase et des charges comme suit [11] :

$$\Phi_{eff} = \Phi_f + \Phi_i \quad (5.18)$$

Dans laquelle, la fraction volumique de l'interphase Φ_i dans un système comprenant des charges de remplissage est donnée par [8], [11], [12] :

$$\Phi_i = \Phi_f \left(\frac{2e}{\alpha} \right) \quad (5.19)$$

où e est l'épaisseur de l'interphase (la surface de contact entre le polymère et les charges de remplissage).

La substitution de l'équation (5.19) dans l'équation (5.18) permet d'accéder à l'expression suivante :

$$\Phi_{eff} = \Phi_f + \frac{2\Phi_f e}{\alpha} \quad (5.20)$$

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

Le rapprochement des équations (5.16), (5.20) et (5.12) permet d'obtenir l'expression simple de la conductivité électrique σ [8] :

$$\sigma = \sigma_f \left[\Phi_f + \frac{2\Phi_f e}{\alpha} - \frac{27\pi\alpha}{4D + 2(\alpha + L)} \right]^b \quad (5.21)$$

La résistivité d'un nanocomposite est une mesure de sa capacité à résister au passage du courant électrique. Elle est définie comme la résistance d'un matériau à conduire un courant électrique sous l'effet d'un champ électrique appliqué, et dépend des propriétés du matériau ainsi que de sa structure interne, y compris la distribution et la nature des charges conductrices. En partant du résultat obtenu de la conductivité électrique par la loi de puissance, la résistivité électrique est définie par l'inverse de cette grandeur physique, ρ , comme suit :

$$\rho = \frac{1}{\sigma_f \left[\Phi_f + \frac{2\Phi_f e}{\alpha} - \frac{27\pi\alpha}{4D + 2(\alpha + L)} \right]^b} \quad (5.22)$$

A travers ce modèle théorique, il apparaît que, dans le cas des nanocomposites, la résistivité dépend non seulement des propriétés intrinsèques du polymère et des charges (nanoparticules, nanotubes, graphène, etc.), mais aussi de leur dispersion, de la formation d'un réseau conducteur (percolation), de l'interaction entre les charges et la matrice polymère, et des propriétés d'interphase. Un réseau conducteur formé par les charges dans un nanocomposite permet au courant de circuler plus facilement, ce qui diminue la résistivité du matériau.

5.3. Matériaux utilisés

L'objectif principal de cette étude est d'améliorer la polyvalence du polystyrène (PS) et du polyfluorure de vinylidène (PVDF) pour répondre aux exigences croissantes en matière de matériaux conducteurs dans des secteurs où la légèreté, la durabilité, la sécurité et le faible coût sont cruciaux. Effectivement, l'amélioration de la conductivité électrique de la matrice polymère, par l'ajout de nano-charges conductrices, vise à élargir ses applications industrielles en exploitant des propriétés électriques tout en conservant les avantages du polymère. Le polystyrène (PS) et le polyfluorure de vinylidène (PVDF) sont naturellement isolant, comme le montre le tableau 5.1, mais en les rendant partiellement ou totalement conducteurs, ils deviennent des matériaux polyvalents pour plusieurs domaines tels que électronique et électrotechnique, industrie automobile, fabrication additive et impression 3D, capteurs intelligents et dispositifs portables... Pour ce faire, le renfort utilisé dans cette étude est le

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

graphène (Gn) qui est un excellent conducteur d'électricité grâce à la mobilité élevée de ses électrons sur sa surface, ce qui en fait un matériau idéal pour renforcer la conductivité des composites. Pour atteindre l'objectif de cette étude, les caractéristiques électriques des matériaux utilisés sont regroupées dans les tableaux 5.1 et 5.2.

Renfort et matrice	Graphène (Gn) [12]	Polyfluorure de Vinylidène (PVDF) [15]	Polystyrène (PS) [16]
Conductivité électrique (S/m)	10^5	10^{-12}	10^{-16}

Tableau 5.1. Les caractéristiques électriques des matériaux utilisés [12], [15], [16].

Matériaux nanocomposites	Φ_p	e (nm)	α (nm)	L (nm)	b	D (μm)
(PS/Gn)	0.0010	8	1	8	5.6	2
(PVDF/Gn)	0.0030	2	1	3	7	2

Tableau 5.2. Les paramètres principaux des matériaux nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn) : le début de percolation Φ_p , l'épaisseur des nano-feuillets e et de l'interphase α , la longueur du tunnel L, l'exposant b et le diamètre des nano-feuillets de graphène D [8].

5.4. Résultats et Discussions

5.4.1. Prédiction de la conductivité électrique par le modèle de Wiener

5.4.1.1. Cas du nanocomposite (PS/ Gn)

Dans le cadre du modèle de Wiener, les bornes d'encadrement, qui permettent de délimiter la conductivité électrique effective du polystyrène renforcé par le graphène (PS/ Gn) sont aisément déterminées par les équations (5.4) et (5.5).

a. Borne inférieure

Pour illustrer les variations de la conductivité électrique effective du nanocomposite (PS/ Gn) en fonction de la fraction volumique du renfort (Gn), il nous a apparu judicieux d'exprimer la borne inférieure de cette grandeur physique comme suit :

$$\sigma_{Winf (PS/Gn)} = \frac{\sigma_{Gn}\sigma_{PS}}{\sigma_{PS}\Phi_{Gn} + \sigma_{Gn}(1 - \Phi_{Gn})} \quad (5.23)$$

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

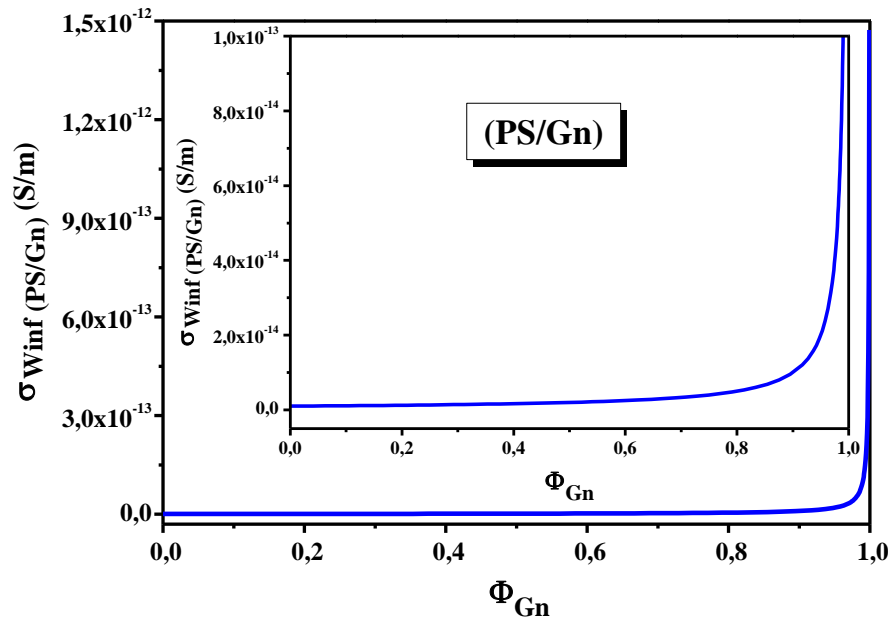


Fig.5.3. Variation de la borne inférieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), $\sigma_{Winf} (PS/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} .

L'analyse de la figure 5.3 représentant la variation de la borne inférieure de la conductivité électrique du composite (PS/ Gn) montre qu'à mesure que la fraction volumique du renfort augmente, cette grandeur physique reste nulle puis subit une légère augmentation lorsque $\Phi_{Gn} \approx 0.9$ avant d'adopter une forme asymptotique lorsque $\Phi_{Gn} \rightarrow 1$. Cela n'est plus surprenant en ce sens que le polystyrène est un polymère isolant de conductivité électrique presque nulle ($\sigma_{PS} = 10^{-16}$ (S/m)) et que le graphène peut améliorer cette conductivité à une valeur qui ne doit pas dépasser 1.48×10^{-12} (S/m). On peut constater que dans ce modèle, la conductivité électrique effective possède une limite inférieure qui ne doit pas la dépasser soit :

$$10^{-16} (S/m) (\text{pour } \Phi_{Gn} = 0) \leq \sigma_{Winf} (PS/Gn) \leq 1.48 \cdot 10^{-12} (S/m) (\text{pour } \Phi_{Gn} \rightarrow 1) \quad (5.24)$$

b. Borne supérieure

Par ailleurs, la borne supérieure de la conductivité électrique du composite (PS/Gn) en fonction de la fraction volumique du renfort est donnée par :

$$\sigma_{Wsup}(PS/Gn) = \sigma_{Gn} \Phi_{Gn} + \sigma_{PS} (1 - \Phi_{Gn}) \quad (5.25)$$

Sur la figure 5.4, nous avons représenté l'évolution de la borne supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn) dans le milieu homogène équivalent, en fonction de la

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

fraction volumique du renfort. Cette figure révèle un accroissement substantiel linéaire de la conductivité électrique du matériau composite (PS/Gn) à mesure que la fraction volumique du renfort croît. En effet, ce résultat indique que cette grandeur physique est limitée par la valeur de 10^5 (S/m) pour une fraction volumique $\Phi_{Gn}=1$.

$$10^{-16}(S/m)(\text{pour } \Phi_{Gn} = 0) \leq \sigma_{Wsup}(PS/GN) \leq 10^5(S/m)(\text{pour } \Phi_{Gn} \rightarrow 1) \quad (5.26)$$

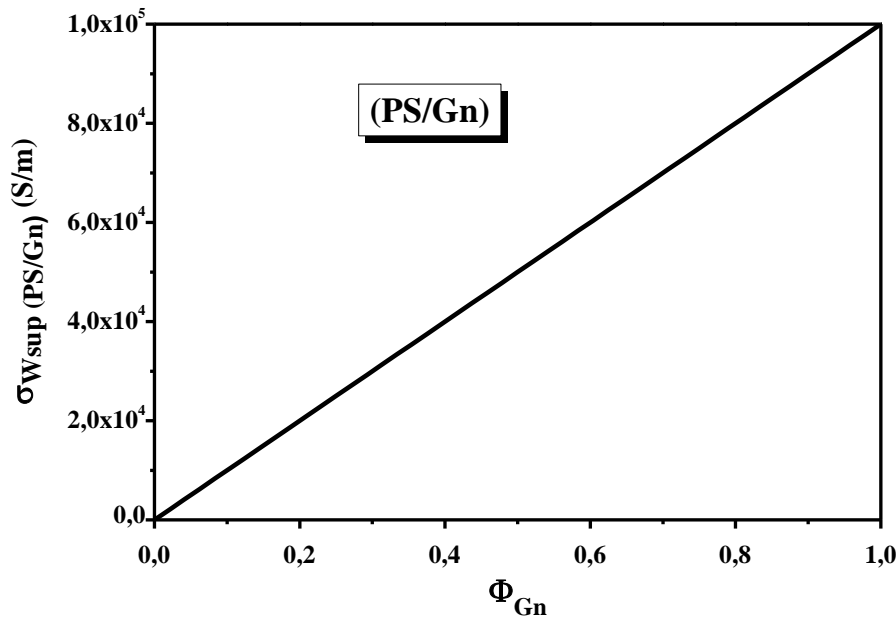


Fig. 5.4. Variation de la borne supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), $\sigma_{Wsup}(PS/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} .

c. Etude comparative entre les deux Bornes de Wiener

Pour illustrer clairement l'efficacité du modèle de Wiener, il nous a apparu judicieux de tracer sur le même graphe les variations de la borne inférieure et supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn) en fonction de la fraction volumique du renfort. En effet, la figure 5.5 montre que l'augmentation de la fraction volumique du renfort (Gn) entraîne une augmentation de la conductivité électrique du composite (PS/Gn). Cela signifie que l'ajout du graphène à la matrice polystyrène (PS) a amélioré sa conductivité électrique. A travers cette étude, nous avons pu estimer les valeurs limites de la conductivité électrique du matériau composite (PS/ Gn) comme suit :

$$1.48 \cdot 10^{-12}(S/m) \leq \sigma_{eff}(PS/Gn) \leq 10^5(S/m) \quad (5.27)$$

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

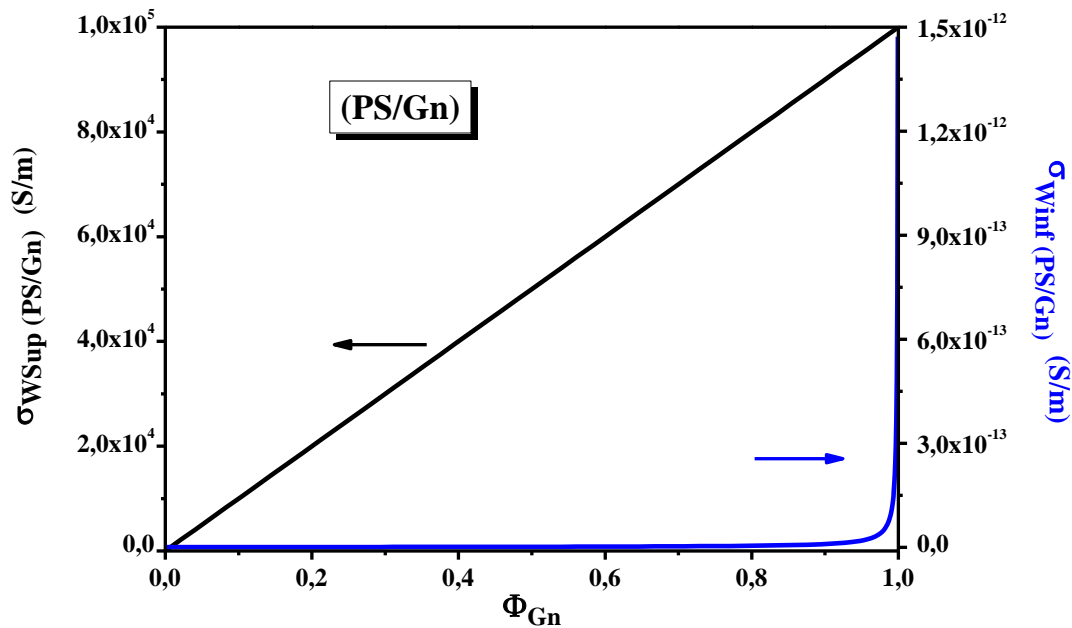


Fig. 5.5. Variations des bornes inférieure et supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/ Gn), $\sigma_{Winf,sup} (PS/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} .

5.4.1.2. Cas du nanocomposite (PVDF/ Gn)

Comme il a été évoqué auparavant, les bornes d'encadrement de la conductivité électrique effective du nanocomposite polyfluorure de vinylidène (PVDF/ Gn) sont exprimées à partir des équations (5.4) et (5.5).

a. Borne inférieure

Basé sur le modèle de Wiener, la borne inférieure de la conductivité électrique du polyfluorure de vinylidène (PVDF) renforcé par le graphène (Gn) est donnée par la relation suivante :

$$\sigma_{Winf} (PVDF/Gn) = \frac{\sigma_{Gn} \sigma_{PVDF}}{\sigma_{PVDF} \Phi_{Gn} + \sigma_{Gn} (1 - \Phi_{Gn})} \quad (5.28)$$

Afin de mettre en évidence l'influence du graphène sur le comportement électrique du polyfluorure de vinylidène (PVDF), il a fallu étudier la dépendance de la conductivité électrique du nano-composite (PVDF/ Gn) en fonction la fraction volumique du graphène (Gn). En effet, la variation de la borne inférieure de cette quantité physique est représentée sur la figure 5.6. A la lumière de cette figure, il apparaît que la borne inférieure de la conductivité croît lentement de la valeur 10^{-12} (S/m) en l'absence du graphène ($\Phi_{Gn}=0$) à une valeur plus ou moins grande 1.48×10^{-8} (S/m) lorsque $\Phi_{Gn} \rightarrow 1$. A travers cette étude, on peut conclure que le graphène a pu

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

augmenter la conductivité électrique de la matrice PVDF de presque 1.48×10^4 (S/m) lorsque la fraction volumique du graphène atteint sa valeur maximale 1. Dans ces conditions, on peut constater que le modèle de Wiener délimite la borne inférieure de la quantité σ_{Winf} (PVDF/Gn) de la façon suivante :

$$10^{-12}(\text{S/m})(\text{pour } \Phi_{Gn} = 0) \leq \sigma_{Winf}(\text{PVDF/Gn}) \leq 1.48 \cdot 10^{-8}(\text{S/m})(\text{pour } \Phi_{Gn} \rightarrow 1) \quad (5.29)$$

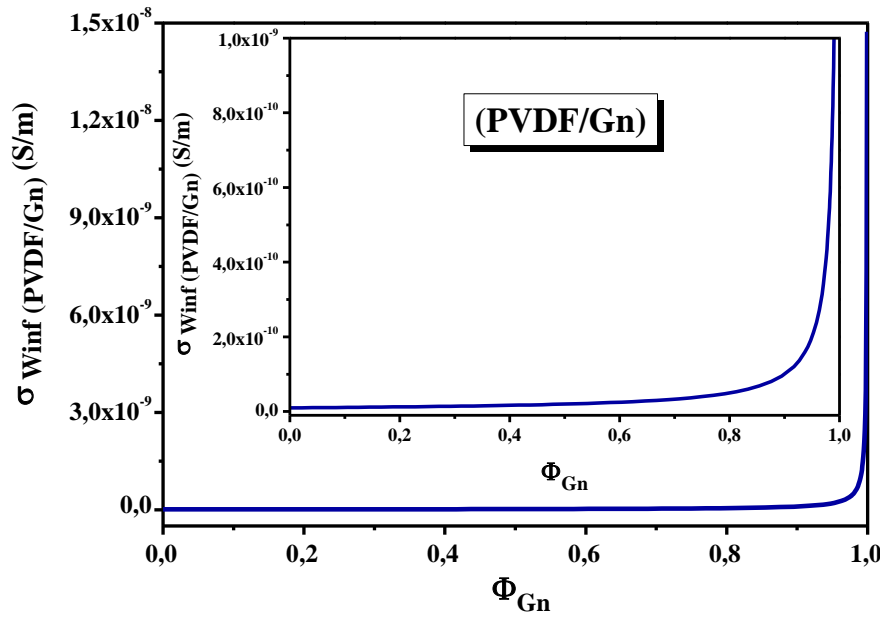


Fig. 5.6. Variation de la borne inférieure de la conductivité électrique du nano-composite (PVDF/Gn), σ_{Winf} (PVDF/Gn), en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} .

b. Borne supérieure

S'agissant de la borne supérieure de la conductivité électrique du composite (PVDF/Gn), elle s'exprime en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} , comme suit :

$$\sigma_{Wsup}(\text{PVGF/Gn}) = \sigma_{Gn} \Phi_{Gn} + \sigma_{PVDF}(1 - \Phi_{Gn}) \quad (5.30)$$

En revanche, les variations de cette quantité sont illustrées sur la figure 5.7 où apparaît un accroissement substantiel linéaire de σ_{Wsup} (PVGF/Gn) à mesure que la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} croît. L'analyse de cette figure montre que le polyfluorure de vinylidène (PVDF) passe de l'état isolant (σ_{Wsup} (PVGF/Gn) = 10^{-12} (S/m)) en l'absence du graphène à un bon conducteur (σ_{Wsup} (PVGF/Gn) = 10^5 (S/m)) lorsque la fraction volumique du graphène prend sa valeur maximale $\Phi_{Gn}=1$. Ces deux limites peuvent être traduites par la relation suivante :

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

$$10^{-12}(S/m)(\text{pour } \Phi_{Gn} = 0) \leq \sigma_{Wsup}(PVDF/Gn) \leq 10^5(S/m)(\text{pour } \Phi_{Gn} \rightarrow 1) \quad (5.31)$$

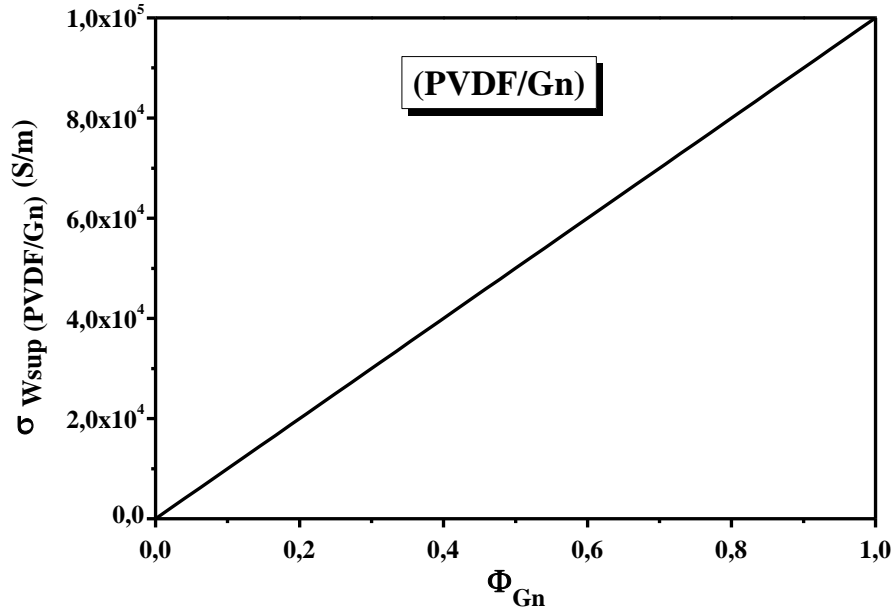


Fig. 5.7. Variation de la borne supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn), $\sigma_{Wsup}(PVDF/Gn)$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} .

c. Etude comparative entre les deux Bornes de Wiener

Pour être complet, sur la figure 5.8 nous comparons de plus près la différence existante entre les deux bornes de Wiener pour le matériau nanocomposite (PVDF/Gn). L'analyse de cette figure révèle que la conductivité électrique effective de ce matériau ne doit pas dépasser les deux limites importantes suivantes :

$$1.48 \cdot 10^{-8}(S/m) \leq \sigma_{eff}(PVDF/Gn) \leq 10^5(S/m) \quad (5.32)$$

Après avoir examiné la conductivité électrique des nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn) à l'aide du modèle de Wiener, qui fournit une estimation encadrée par des bornes théoriques, il convient désormais d'explorer une approche plus spécifique et adaptée aux nanostructures.

À cette fin, le modèle analytique proposé par Deng et Zheng est utilisé pour affiner la prédiction de la conductivité électrique effective. Cette approche permet ainsi de mieux représenter les mécanismes microscopiques de transport électrique observés dans les nanocomposites à matrice polymère contenant des nano-feuillets conducteurs.

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

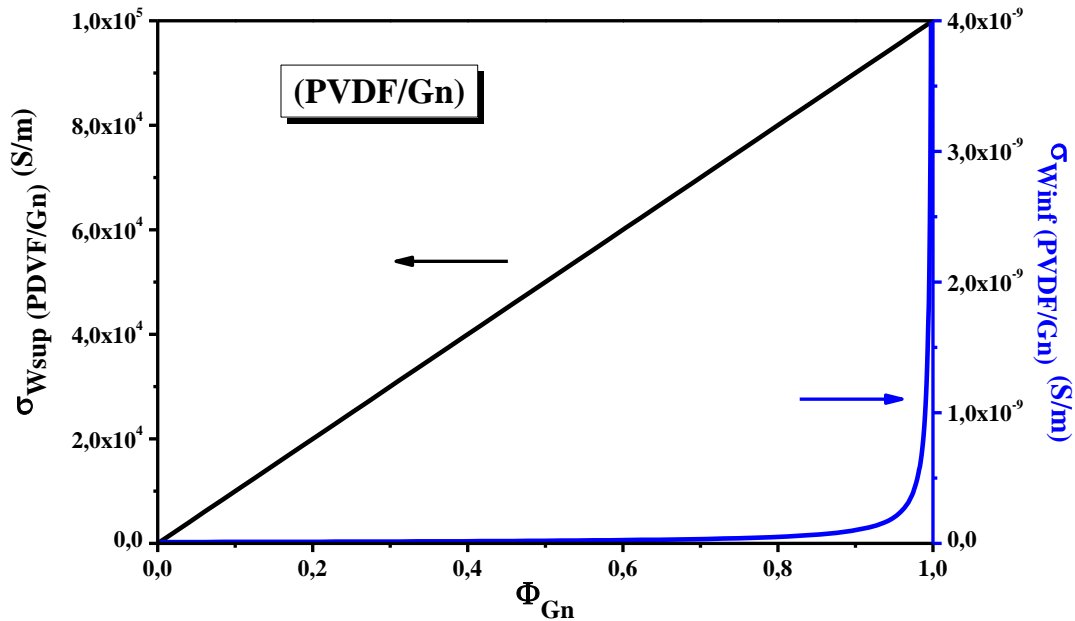


Fig. 5.8. Variations des bornes inférieure et supérieure de la conductivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn), $\sigma_{Winf,sup}$ (PVDF/Gn), en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} .

5.4.2. Prédiction de la conductivité électrique par le modèle de Deng-Zheng

5.4.2.1. Cas du nanocomposite (PS/Gn)

Les nanocomposites de polystyrène/ graphène sont des matériaux composites qui combinent le polystyrène, un polymère largement utilisé, avec le graphène, une forme de carbone connue pour ses propriétés exceptionnelles. Ces nanocomposites tirent parti des caractéristiques du graphène, telles que sa résistance mécanique, sa conductivité électrique et sa légèreté, pour améliorer les performances du polystyrène. Pour cette raison, la deuxième partie de ce travail est consacrée à étudier l'influence de quelques paramètres physico-chimiques tels que la concentration et la conductivité du graphène ainsi le seuil de percolation sur le comportement électrique de ce matériau nanocomposite.

Selon le modèle de Deng et Zheng [6], [7], l'expression de la conductivité électrique des nanocomposites (PS /Gn) est donnée par :

$$\sigma_{(PS/Gn)} = \sigma_{PS} + \sigma_{Gn} \frac{\Phi_{Gn}^{\frac{1}{3}} - \Phi_p^{\frac{1}{3}}}{3 \left(1 - \Phi_p^{\frac{1}{3}}\right)} \Phi_{Gn} \quad (5.33)$$

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

a. Influence de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} , sur la conductivité électrique du (PS/Gn)

À titre d'illustration, nous avons représenté, sur la figure 5.9, l'évolution de la conductivité électrique $\sigma_{(PS/Gn)}$, en fonction de la fraction volumique du graphène Φ_{Gn} , pour une valeur fixe du seuil de percolation $\Phi_p=0.001$ (Voir le tableau 5.2). L'analyse de cette figure montre un accroissement substantiel de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn) à mesure que la fraction volumique du graphène augmente. En effet, à faible concentration, les nanoparticules peuvent ne pas former un réseau conducteur, ce qui maintient une conductivité petite. À partir d'un certain seuil de concentration, un réseau conducteur peut se former, ce qui augmente la conductivité du matériau considéré. Il convient de noter que, la valeur limite de la conductivité électrique du (PS/Gn) améliorée par le graphène, d'après nos résultats, ne doit pas dépasser la valeur d'environ 33333,34 (S/m).

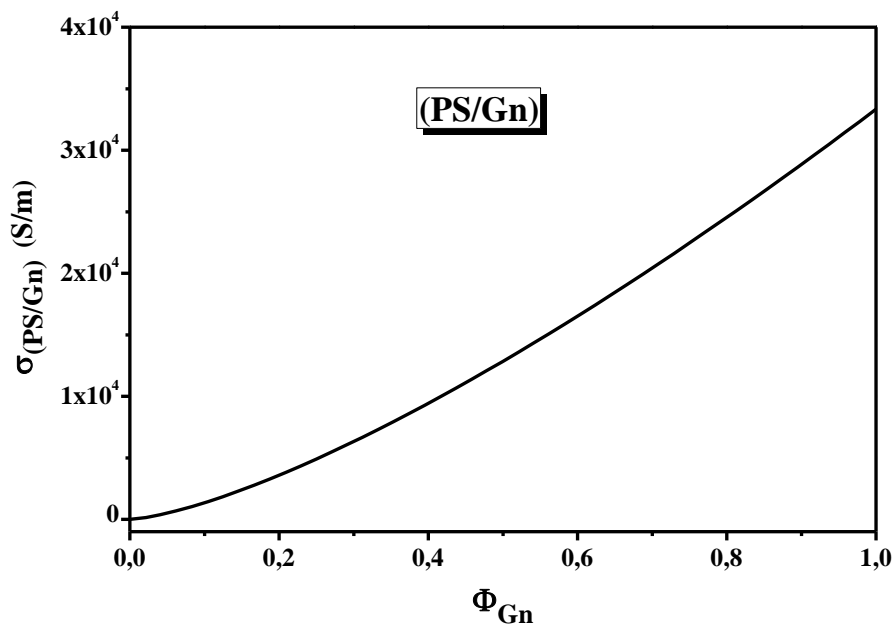


Fig. 5.9. Variation de la conductivité électrique, $\sigma_{(PS/Gn)}$, en fonction de la fraction volumique du des nano-feuilles de graphène, Φ_{Gn} , pour le matériau nanocomposite (PS/Gn).

b. Influence de la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène, σ_{Gn} , sur la conductivité électrique du (PS/Gn)

Comme il a été évoqué auparavant, l'influence de la conductivité électrique du graphène est traitée afin d'identifier de nouvelles caractéristiques dues au polystyrène (PS) qui possède une conductivité électrique presque négligeable. Pour mieux cerner le comportement physique d'un

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

tel matériau, il sera plus judicieux d'étudier l'évolution de la conductivité électrique du (PS/Gn) en fonction de la conductivité électrique du graphène σ_{Gn} . Pour cette raison, la variation de la quantité $\sigma_{(PS/Gn)}$ en fonction σ_{Gn} pour $\phi_{Gn}=0.5$ et $\phi_p=0.001$ est illustrée sur la figure 5.10. A la lumière de cette figure, il apparaît que la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène a une influence importante dans l'amélioration de la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn). En effet, le graphène (Gn), en raison de ses propriétés exceptionnelles de conductivité, est particulièrement utile dans l'amélioration des propriétés électriques des matériaux nanocomposites, lorsqu'il est intégré dans des matrices polymères telle que le polystyrène (PS), il forme un réseau conducteur qui permet une meilleure conductivité électrique, tout en maintenant ou en améliorant les propriétés mécaniques. Par ailleurs, l'analyse de la figure 5.10, fait apparaître que la conductivité électrique du nanocomposite (PS/Gn) est maximale à une certaine valeur de 12846,31 (S/m) pour une conductivité électrique du graphène, $\sigma_{Gn}=10^5$ (S/m).

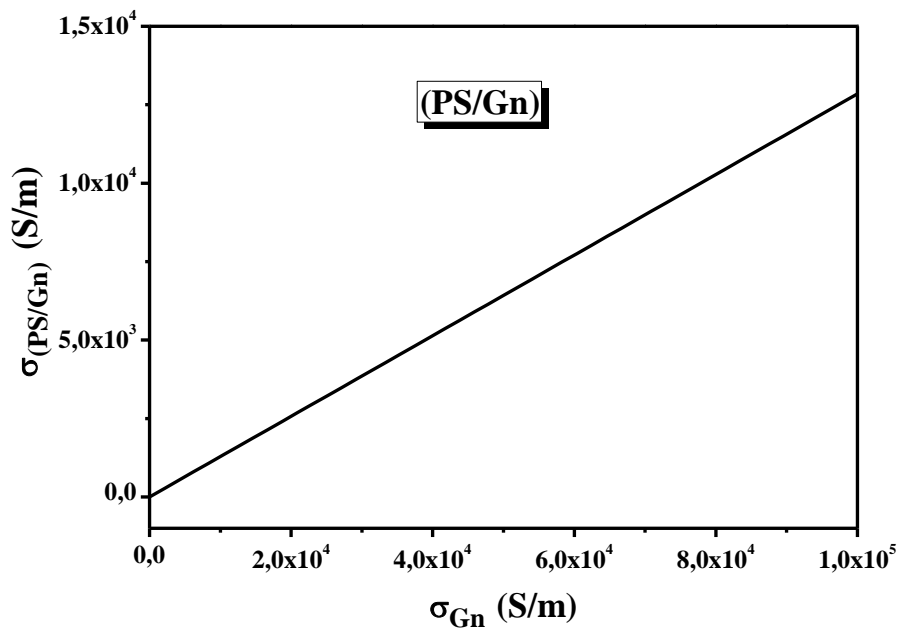


Fig. 5.10. Variation de la conductivité électrique, $\sigma_{(PS/Gn)}$, en fonction de la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène, σ_{Gn} , pour le nanocomposite (PS/Gn).

5.4.2.2. Cas du nanocomposite (PVDF/ Gn)

Basé sur le modèle de Deng et Zheng [6], [7], l'expression de la conductivité électrique du nanocomposite (PVDF /Gn) est donnée par :

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

$$\sigma_{(PVDF/Gn)} = \sigma_{PVDF} + \sigma_{Gn} \frac{\Phi_{Gn}^{\frac{1}{3}} - \Phi_p^{\frac{1}{3}}}{3 \left(1 - \Phi_p^{\frac{1}{3}}\right)} \Phi_{Gn} \quad (5.34)$$

a. Influence de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn} , sur la conductivité électrique du (PVDF/ Gn)

Sur la figure 5.11, nous avons représenté la variation de la conductivité électrique du (PVDF/Gn) en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} , pour une valeur fixe de $\Phi_p = 0.003$ (Voir le tableau 5.2). Comme nous l'avons vu précédemment, pour le polystyrène (PS), l'incorporation du graphène dans la matrice de polyfluorure de vinylidène (PVDF) conduit à une amélioration significative des propriétés électriques du matériau final. En effet, la figure 5.11 montre un accroissement substantiel de la conductivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn) dans la mesure où la concentration du graphène augmente. Pour un tel matériau, on constate que la conductivité électrique est maximale, soit $\sigma_{(PVDF/Gn)} \approx 3.9 \times 10^4$ (S/m), pour une valeur élevée de la fraction volumique du graphène, soit $\Phi_{Gn} = 1$. Cela signifie, d'une part que, la conductivité électrique de la matrice PVDF est améliorée par l'ajout du graphène et d'autre part, la conductivité du nanocomposite (PVDF/Gn) ne doit pas dépasser la valeur de 3.9×10^4 (S/m).

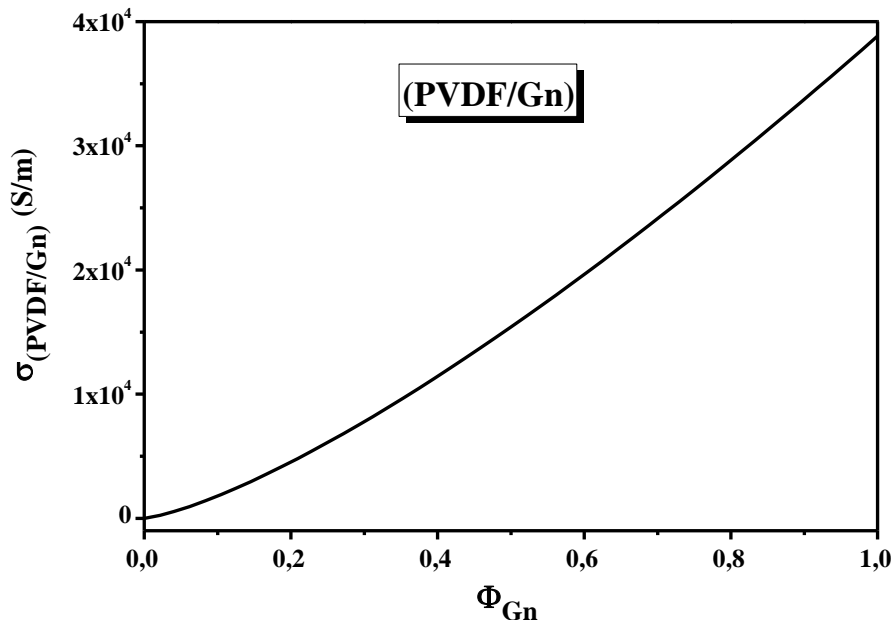


Fig. 5.11. Variation de la conductivité électrique, $\sigma_{(PVDF/Gn)}$, en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} , pour le nanocomposite (PVDF/Gn).

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

b. Influence de la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène, σ_{Gn} , sur la conductivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn)

Afin de mettre en évidence l'influence de la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène, σ_{Gn} , sur le comportement électrique du matériau sus-évoqué, il a fallu représenter la dépendance de la conductivité électrique $\sigma_{(PVDF/Gn)}$ en fonction de la quantité σ_{Gn} pour $\Phi_{Gn}=0.5$ et $\Phi_p = 0.003$. L'analyse de la figure 5.12 fait apparaître un comportement similaire à celui observé pour le nano-composite (PS/Gn), la seule différence réside dans le fait que la limite supérieure de la conductivité globale du (PVDF/Gn) atteinte pour $\sigma_{Gn}=10^5$ (S/m) s'approche de la valeur 12648,88 (S/m) (soit $\sigma_{(PVDF/Gn)} \approx 12648,88$ (S/m)) plus petite que celle obtenue pour le nanocomposite (PS/Gn) (soit $\sigma_{(PS/Gn)} \approx 12846,31$ (S/m)).

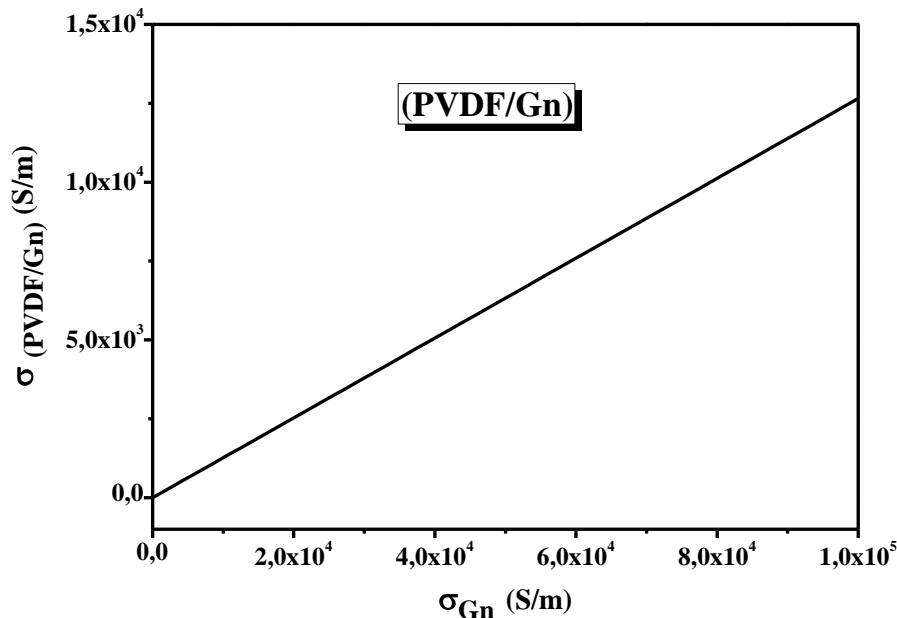


Fig. 5.12. Variation de la conductivité électrique, $\sigma_{(PVDF/Gn)}$, en fonction de la conductivité électrique des nano-feuillets de graphène, σ_{Gn} , pour le nanocomposite (PVDF/Gn).

5.4.3. Analyse comparative des modèles de Wiener et de Deng-Zheng

L'analyse comparative des résultats obtenus par les modèles de Wiener et de Deng-Zheng appliqués aux nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn) permet de mieux cerner l'influence des hypothèses de modélisation sur la prédiction de la conductivité électrique effective.

Les bornes de Wiener, fondées sur une approche simplifiée et bidirectionnelle (borne inférieure et borne supérieure), offrent une estimation encadrée de la conductivité électrique en supposant une répartition idéale des charges dans des configurations extrêmes. Elles sont particulièrement

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

utiles pour obtenir une première approximation du comportement électrique d'un composite en fonction du taux de charge conductrice. En revanche, le modèle de Deng-Zheng repose sur une approche plus sophistiquée tenant compte de la géométrie, de la distribution des nano-feuillets de graphène, ainsi que de leur orientation et leur effet de percolation. Ce modèle permet de fournir des prédictions plus réalistes, notamment dans le cas de faibles concentrations de graphène où les effets interfaciaux et la connectivité jouent un rôle prépondérant.

Dans le cas du nanocomposite (PS/Gn), les deux modèles révèlent une augmentation progressive de la conductivité électrique avec la fraction volumique de graphène. Toutefois, le modèle de Deng-Zheng prédit des valeurs plus élevées à partir d'un seuil critique, ce qui correspond à la formation de chemins conducteurs continus (effet de percolation). Cette tendance est encore plus marquée pour le système (PVDF/Gn), en raison des propriétés intrinsèquement polaires du PVDF, qui favorisent l'interaction avec les nano-feuillets et renforcent la conduction.

Ainsi, bien que le modèle de Wiener fournisse un cadre de référence utile, il tend à sous-estimer la conductivité effective dans les systèmes réels, en particulier lorsqu'une structure réseau commence à se former. À l'inverse, le modèle de Deng-Zheng permet d'expliquer les mécanismes de conduction plus complexes, en tenant compte de la microstructure et de l'organisation spatiale des charges.

5.4.4. Prédiction de la résistivité électrique par la loi de puissance

Pour pouvoir identifier facilement les effets de quelques paramètres tels que la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} , son épaisseur α et l'épaisseur de l'interphase e sur le comportement électrique des nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn), nous allons étudier séparément les variations de leur résistivité électrique, ρ .

5.4.4.1. Cas du nanocomposite (PS/Gn)

L'expression de la résistivité électrique du (PS/ Gn) en fonction de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn} , est exprimée par la relation suivante :

$$\rho_{(PS/Gn)} = \frac{1}{\sigma_{Gn} \left[\Phi_{Gn} + \frac{2\Phi_{Gn}e_{(PS/Gn)}}{\alpha_{Gn}} - \frac{27\pi\alpha_{Gn}}{4D_{Gn} + 2(\alpha_{Gn} + L_{(PS/Gn)})} \right]^{b_{(PS/Gn)}}} \quad (5.35)$$

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDf/Gn)

a. Influence de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn} , sur la résistivité électrique du (PS/Gn)

Sur la figure 5.13, nous avons représenté les variations de la résistivité électrique du (PS/Gn) en fonction de la fraction volumique du graphène, Φ_{Gn} . L'analyse de cette figure montre que l'augmentation de la fraction volumique du graphène provoque une diminution de la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn). En effet, à faible concentration, les nanoparticules peuvent ne pas former un réseau conducteur, ce qui maintient une résistivité élevée. À partir d'un certain seuil de concentration, un réseau conducteur peut se former, ce qui diminue la résistivité. Pour un tel matériau, on constate que la résistivité électrique est maximale, soit $\rho_{(PS/Gn)} \approx 5,31 \times 10^{-7}$ (Ωm), pour une faible fraction volumique du graphène, soit $\Phi_{Gn} = 0,1$. Cela signifie que ce nanocomposite a une résistance au passage du courant électrique égale à $5,31 \times 10^{-7}$ (Ω).

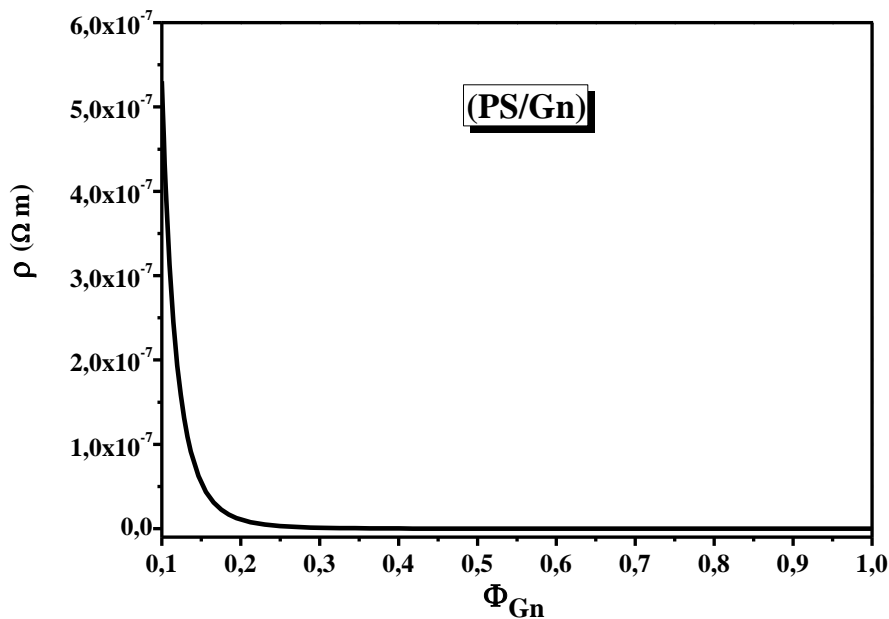


Fig. 5.13. Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), ρ , en fonction de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn} .

b. Influence de l'épaisseur des nano-feuillets de graphène, α , sur la résistivité électrique du (PS/Gn)

Pour illustrer clairement l'effet de l'épaisseur des nano-feuillets du graphène α , dans le cas d'une distribution tridimensionnelle (3D), sur la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), il nous a paru judicieux d'étudier les variations de la quantité ρ en fonction de

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

l'épaisseur α pour une valeur fixe de la fraction volumique du graphène, soit $\Phi_{Gn}=0.5$. En effet, la figure 5.14 montre un accroissement exponentiel de la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn) entre $\alpha=0.38$ et $\alpha=1$ (nm). Par contre cette quantité reste constante pour des faibles valeurs de l'épaisseur α . Ce résultat n'est plus surprenant, en ce sens que plus l'épaisseur entre les nano-feuillets du graphène est grande, plus la résistivité électrique est très élevée. En revanche, l'analyse de cette figure, révèle que la résistivité maximale atteinte par le nanocomposite (PS/Gn) est d'environ $6,28 \times 10^{-11}$ (Ωm) pour une valeur de $\alpha=1$ (nm).

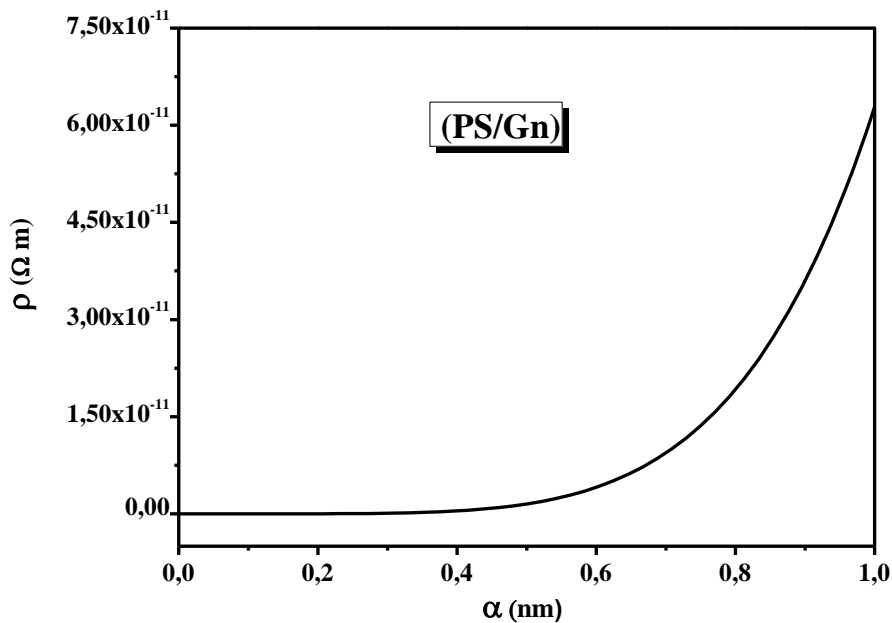


Fig. 5.14. Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), ρ , en fonction de l'épaisseur des nano-feuillets de graphène, α .

c. Influence de l'épaisseur de l'interphase, e , sur la résistivité électrique de (PS/Gn)

S'agissant de l'influence de l'épaisseur d'interphase e séparant les deux phases polystyrène (PS) et graphène (Gn), la variation de la résistivité électrique, ρ , en fonction de la quantité e , est illustrée sur la figure 5.15 pour une valeur fixe de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène $\Phi_{Gn}=0.5$. L'analyse de cette figure montre que l'augmentation de l'épaisseur d'interphase, e , entre le polystyrène et le graphène provoque une diminution plus rapide de la résistivité électrique du nano-composite (PS/Gn) entre $e=0$ et $e=0.1$ (nm). Par contre, au-delà de cette dernière valeur, la grandeur physique, ρ , décroît d'une façon plus lente à mesure que l'épaisseur e croît avant qu'elle demeure presque constante pour les grandes valeurs de la

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

quantité e . A cet égard, il y a lieu de souligner que, en l'absence de surface de contact entre le polystyrène et le graphène, soit $e=0$, la résistivité électrique du nano-composite (PS/Gn) est maximale, soit $\rho \approx 5,5 \times 10^{-4}$ (Ωm).

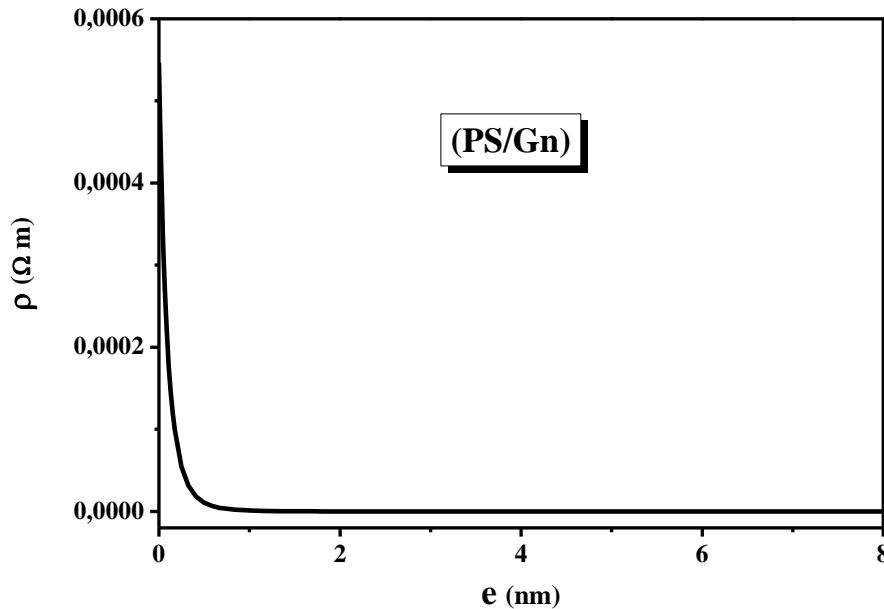


Fig. 5.15. Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PS/Gn), ρ , en fonction de l'épaisseur de l'interphase, e .

5.4.4.2. Cas du nanocomposite (PVDF/ Gn)

De la même manière que précédemment, nous allons étudier l'influence de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène Φ_{Gn} , de leurs épaisseur α et de l'épaisseur de l'interphase e sur le comportement électrique des nano-composites (PVDF/Gn). Pour un tel matériau, l'expression de la résistivité électrique s'écrit comme suit :

$$\rho_{(PVDF/Gn)} = \frac{1}{\sigma_{Gn} \left[\Phi_{Gn} + \frac{2\Phi_{Gn}e_{(PVDF/Gn)}}{\alpha_{Gn}} - \frac{27\pi\alpha_{Gn}}{4D_{Gn} + 2(\alpha_{Gn} + L_{(PVDF/Gn)})} \right]^{b_{(PVDF/Gn)}}} \quad (7.36)$$

a. Influence de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn} , sur la résistivité électrique du (PVDF/Gn)

Comme il a été évoqué précédemment, le deuxième nanocomposite utilisé dans la présente étude est le polyfluorure de vinylidène (PVDF) dont les paramètres principaux diffèrent de celui

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

du (PS/Gn). La variation de la résistivité électrique du (PVDF/Gn) en fonction de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène est illustrée sur la figure 5.16. L'analyse de cette figure montre un comportement similaire à celui observé pour le (PS/Gn), la seule différence réside dans le fait que la variation de la résistivité électrique du (PVDF/Gn) est moins faible en la comparant à celle trouvée pour le (PS/Gn), cela n'est plus surprenant puisque le polystyrène (PS) est un polymère beaucoup plus isolant que celui du polyfluorure de vinylidène (PVDF). En effet, la valeur maximale de cette grandeur physique est d'environ $1,5 \times 10^{-3}$ (Ωm) pour une concentration du graphène égale à 0.1.

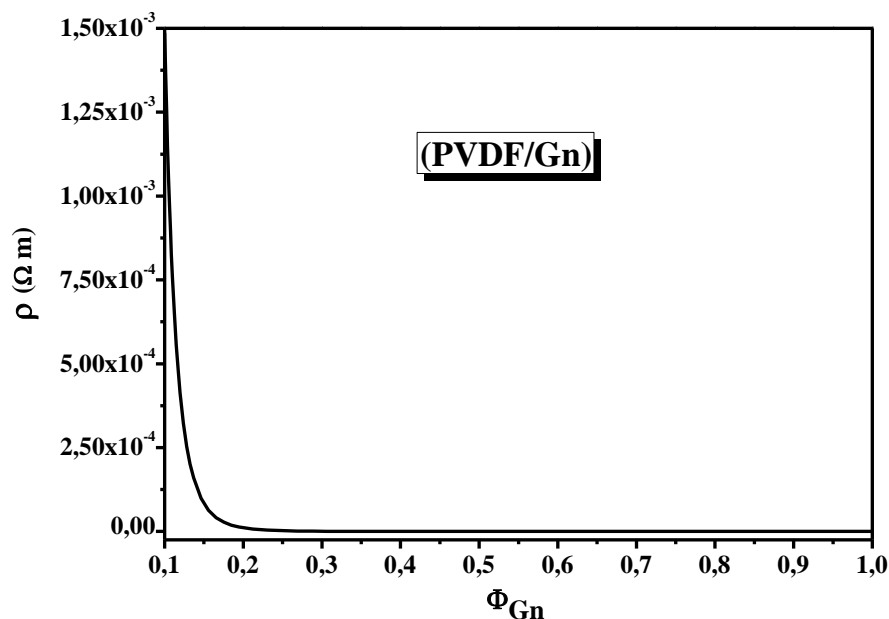


Fig. 5.16. Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn), ρ , en fonction de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn} .

b. Influence de l'épaisseur des nano-feuillets du graphène, α , sur la résistivité électrique du (PVDF/Gn)

Pour une valeur fixe de la fraction volumique des nano-feuillets du graphène $\Phi_{Gn} = 0,5$, nous avons représenté sur la figure 5.17 la variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn) en fonction de l'épaisseur α . A la lumière de cette figure, il apparaît clairement que la résistivité électrique de ce composite est presque constante pour des faibles valeurs de α allant de 0 à 0.4 (nm) puis commence à augmenter d'une manière exponentielle jusqu'à atteindre une valeur maximale égale $1,688 \times 10^{-8}$ (Ωm) pour $\alpha = 1$ (nm).

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

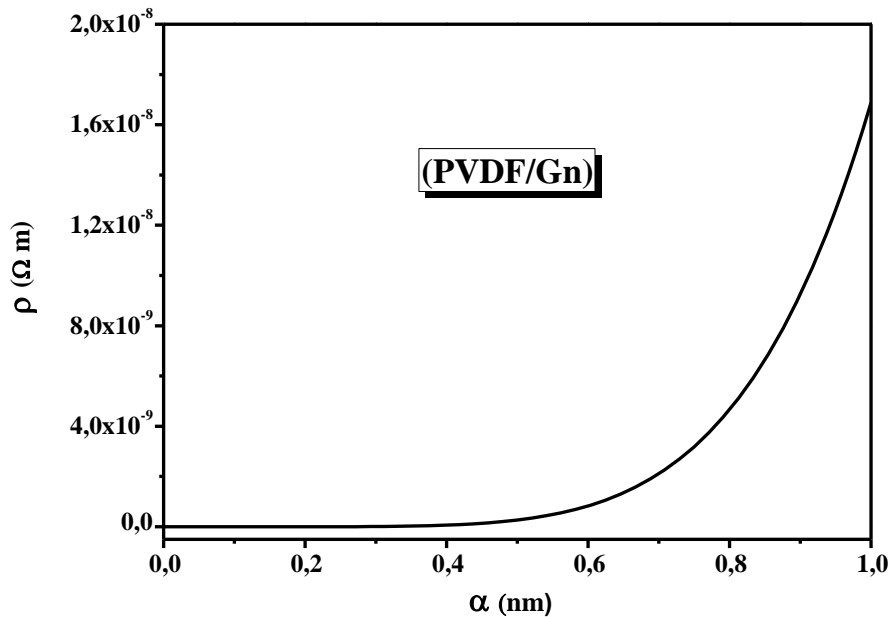


Fig. 5.17. Variation de la résistivité électrique du nanocomposite (PVDF/Gn), ρ , en fonction de l'épaisseur des nano-feuillets de graphène, α .

c. Influence de l'épaisseur de l'interphase e sur la résistivité électrique du (PVDF/Gn)

Afin de mettre en évidence l'influence de l'épaisseur de l'interphase e , représentant la surface de contact entre le polymère et les charges de remplissage, sur le comportement électrique du (PVDF/Gn), nous avons représenté sur la figure 5.18 la dépendance de la résistivité électrique, ρ , en fonction de la quantité, e , pour une valeur fixe de la fraction volumique du graphène, soit $\Phi_{Gn}=0.5$. À la lumière de cette figure, il apparaît une diminution plus rapide de la résistivité électrique ρ pour des valeurs plus petites à $e=0.5$ (nm), mais au-delà de cette valeur la résistivité du nanocomposite (PVDF/Gn) décroît lentement à mesure que l'épaisseur de l'interphase, e , croît et devient presque constante. Cependant, il y a lieu de souligner que la résistivité électrique du (PVDF/Gn) est maximale, soit $\rho \approx 0,0015$ (Ωm) pour une interphase nulle ($e=0$). Cela signifie que ce nanocomposite possède une résistance maximale au passage du courant électrique égale à 1.5×10^{-3} (Ω) pour une absence de surface de contact entre le PVDF et les nano-feuillets de graphène.

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

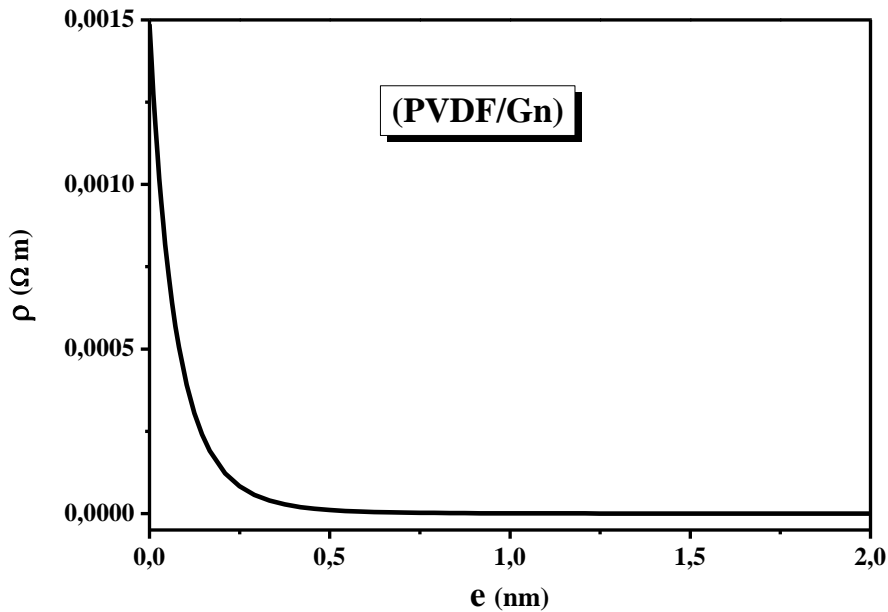


Fig. 5.18. Variation de la résistivité électrique du matériau nanocomposite (PVDF/Gn), ρ , en fonction de l'épaisseur de l'interphase, e .

5.5. Conclusion

L'objectif principal de ce travail était d'étudier les propriétés électriques des nanocomposites à savoir le polystyrène (PS) et le polyfluorure de vinylidène (PVDF) renforcés dans le graphène (Gn). En effet, en recourant à un modèle analytique approprié tel le modèle de Wiener, nous avons pu prédire la conductivité électrique de ces matériaux à microstructure hétérogène. Nous avons constaté à travers cette étude que le comportement électrique des composites polymères varie selon le choix des matériaux et leur configuration. L'introduction de renforts conducteurs dans une matrice polymère peut conférer au composite une large diversité de comportements électriques, allant d'un caractère isolant à un comportement conducteur, tout en présentant des propriétés diélectriques spécifiques.

Dans cette étude nous avons traité l'évolution des deux bornes inférieure et supérieure de la conductivité électrique des matériaux sus-évoqués en variant la fraction volumique du graphène (Gn). Les courbes ainsi obtenues ont montré un comportement différent des deux bornes inférieure et supérieure : une variation lente où la conductivité était proche de celle de la matrice isolante puis une légère augmentation pour les grandes valeurs de la fraction volumique du graphène Φ_{Gn} , et une variation importante linéaire allant d'une conductivité proche de celle de la matrice isolante à une autre proche à celle du renfort ajouté.

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

Effectivement, cette étude nous a permis de montrer que l'ajout d'une petite quantité de renfort conducteur peut induire un changement important dans les propriétés électriques des nanocomposites étudiés. En outre, nous avons pu, à travers le modèle de Wiener, d'estimer les limites de la conductivité électrique effective des matériaux composites (PS/Gn) et (PVDF/Gn). Par ailleurs, en faisant usage au modèle théorique de Deng et Zheng [6], [7], nous avons pu traiter l'effet de quelques facteurs indispensables sur la conductivité électrique des deux nanocomposites le (PS/Gn) et le (PVDF/Gn). Cette étude met en évidence l'importance cruciale de la fraction volumique du graphène et de sa conductivité électrique. A travers ce travail, nous avons constaté que l'incorporation du graphène dans la matrice polymère peut conduire à une amélioration significative des propriétés électriques du matériau final. De plus, ces nanocomposites tirent parti des caractéristiques du graphène, telle que sa conductivité électrique, pour améliorer les performances du polystyrène et du polyfluorure de vinylidène. À cet effet, nous avons représenté les variations de la conductivité électrique des nanocomposites sus-évoqués en fonction de la concentration du graphène Φ_{Gn} . L'analyse des courbes a montré que l'augmentation de la fraction volumique du graphène favorise la formation d'un réseau conducteur au sein de la matrice polymère, améliorant ainsi la conductivité électrique globale du matériau. S'agissant de l'influence de la conductivité électrique du graphène sur le comportement électrique des nanocomposites considérés, les résultats ont montré que ce facteur est indispensable pour améliorer la conductivité électrique globale des nanocomposites, puisque la conductivité du graphène est plus élevée par rapport aux chaînes polymères massives.

En conclusion, l'utilisation combinée des deux modèles s'avère complémentaire : les bornes de Wiener pour encadrer les performances possibles, et le modèle de Deng-Zheng pour affiner la prédiction dans des configurations réalistes. Cette comparaison met en évidence la nécessité d'adapter les modèles analytiques aux spécificités des matériaux étudiés afin d'optimiser leurs propriétés électriques pour des applications avancées.

Par ailleurs, l'usage du modèle de loi de puissance, nous a permis d'étudier l'influence de quelques paramètres physico-chimiques sur le comportement de la résistivité électrique de ces matériaux tels que la fraction volumique et l'épaisseur des nano-feuillets de graphène et l'épaisseur de l'interphase. La variation de la résistivité électrique, ρ en fonction de la fraction volumique des nano-feuillets de graphène, Φ_{Gn} , pour les deux nanocomposites a montré un comportement différent dans deux domaines de la fraction volumique Φ_{Gn} . En effet, il a été observé un décroissement de la quantité ρ dans le domaine des faibles valeurs de Φ_{Gn} puis à

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

mesure que la concentration en graphène augmente, la résistivité diminue et devient presque constante (une asymptote lorsque $\Phi_{Gn} \rightarrow 1$). Pour les deux nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn), nous avons constaté que la résistivité électrique est maximale, soit $\rho_{(PS/Gn)} \approx 5,31 \times 10^{-7}$ (Ωm) et $\rho_{(PVDF/Gn)} \approx 1,5 \times 10^{-3}$ (Ωm), pour une faible fraction volumique du graphène, soit $\Phi_{Gn} = 0.1$. Cela signifie que l'incorporation des nano-feuillets de graphène dans les matrices (PS) et (PVDF) entraîne une diminution significative de leurs résistivité électrique ($\rho_{PS} = 10^{16}$ (Ωm) et $\rho_{PVDF} = 10^{12}$ (Ωm)), due à l'amélioration de la conductivité électrique du composite. Nous avons, ensuite, étudié l'influence de l'épaisseur des nano-feuillets de graphène α sur le comportement de la résistivité électrique des nanocomposites sus-évoqués. L'idée principale était de voir comment influe ce paramètre sur le comportement électrique des polymères individuels. Les résultats ainsi obtenus ont montré que l'épaisseur des nano-feuillets de graphène, α , a un impact significatif sur la résistivité électrique des nanocomposites considérés. Il a été observé que la résistivité reste presque finie dans le domaine des faibles valeurs de α puis subit un accroissement substantiel lorsque α augmente.

L'effet de l'épaisseur d'interphase e , qui se forme autour des nano-feuillets de graphène, a été étudié pour les deux nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn). Pour cette raison, nous avons représenté la variation de la résistivité électrique, ρ , en fonction de la quantité e . L'analyse des différentes courbes a montré une diminution plus rapide de la résistivité ρ pour les faibles valeurs de e puis cette grandeur physique prend une forme asymptotique lorsque l'épaisseur e devient importante.

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

5.6. Références

- [1] S. Barrau “Nanocomposites à matrice polymère, structure et propriétés fonctionnelles” *Thèse de Doctorat*, Université de Lille, France, 2021.
- [2] A. Benamara, “Vue Générale Sur les Nano-Composite (Polymère-Nanotubes De Carbone), Chapitre III” *Mémoire de Master*, Université de Tiaret, Algérie, 2019.
- [3] D. Strugova, E. David, N. R. Demarquette, “Les composites polymères conducteurs” *École de Technologie Supérieure*, 2023.
- [4] I. A. Starkov, A. S. Starkov, “Maxwell–Garnett model for thermoelectric materials, *International Journal of Solids and Structures*” **2020**, 202, 226–233.
- [5] F. D. Senghor, “Identification des propriétés anisotropes des matériaux complexes : application aux matériaux composites stratifiés”, *Thèse de Doctorat*, Université de Nantes, 2017.
- [6] Y. Zare, N. Gharib, D-H. Nam & Y-W. Chang, “Predicting of tunneling resistivity between adjacent nanosheets in graphene-polymer systems” *Scientific Report* **2023**, 13, 12455.
- [7] Y. Zare, Y. R. Kyong, “Polymer tunneling resistivity between adjacent carbon nanotubes (CNT) in polymer nanocomposites” *Journal of physics and chemistry of solids* **2020**, 147, 109664.
- [8] Y. Zare, K. Y. Rhee & S-J. Park, “Progressing of a power model for electrical conductivity of graphene-based composites” *Scientific Reports* **2023**, 13(1), 1596.
- [9] M Weber, M. R. Kamal, “Estimation of the volume Resistivity of electrically conductive composites” *Polymer Composites* **1997**, 18, 711-725.
- [10] J. Li, and J. K. Kim, “Percolation threshold of conducting polymer composites containing 3D randomly distributed graphite nanoplatelets” *Composites Science and Technology* **2007**, 67 (10), 2114–2120.
- [11] Y. Zare, M. T. Munir, & K. Y. Rhee, “Assessment of electrical conductivity of polymer nanocomposites containing a deficient interphase around graphene nanosheet” *Scientific Report* **2024**, 14, 8737.
- [12] Y. Zare, Y. K. Rhee, “Development of a model for electrical conductivity of polymer/graphene nanocomposites assuming interphase and tunneling regions in conductive networks” *Industrial & Engineering Chemistry Research* **2017**, 56(32), 9107–9115.

Chapitre 5. Comportement électrique des nanocomposites à matrice polymère : Cas des systèmes (PS/Gn) et (PVDF/Gn)

- [13] S. Kirkpatrick, “Percolation and Conduction” *Reviews of Modern Physics* **1973**, 45 (4), 574-588.
- [14] I. Balberg, N. Binenbaum, N. Wagner, “Percolation Thresholds in the Three-Dimensional Sticks System” *Physical Review Letters* **1984**, 52 (17), 1465-1468.
- [15] L. Ramachandran, “Comportement Electrique Large Bande des Composites Polymère - Fils Submicroniques d’Or : Corrélation avec la Structure et les Propriétés Mécaniques”, *Thèse de Doctorat*, Université de Toulouse, 2017
- [16] Z. Cherrad, “Polymères conducteurs et leurs applications”, *Mémoire de Licence*, Université de Bordj Bou Arreridj, 2013.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Conclusions et Perspectives

Le présent travail avait pour objectif principal l'étude et la modélisation des propriétés mécaniques, thermiques et électriques des matériaux composites et nanocomposites à matrice polymère. Pour ce faire, une approche théorique et analytique a été adoptée afin de caractériser les comportements fonctionnels de divers systèmes, à savoir : (PEHD/Bore), (PEHD/Kevlar 49), (PEHD/TiB₂), (PEDM/TiB₂), (PEBD/TiB₂), (PS/Gn) et (PVDF/Gn).

Dans un premier temps, les fondements conceptuels relatifs aux matériaux composites et nanocomposites ont été exposés, avec l'objectif de fournir un socle de connaissances permettant de mieux appréhender les phénomènes mis en jeu. Cette première partie a ainsi permis de clarifier les notions essentielles nécessaires à la compréhension des propriétés physiques étudiées dans les systèmes susmentionnés.

Dans la deuxième partie, l'étude s'est orientée vers l'évaluation des propriétés mécaniques de composites unidirectionnels (PEHD/Kevlar 49) et (PEHD/Bore). L'influence de la nature, de la taille et du taux de renfort a été analysée sur des paramètres fondamentaux tels que le module de Young, la contrainte maximale et la déformation à la rupture. Cette analyse a permis de mieux comprendre le rôle des fibres dans l'amélioration des performances mécaniques des composites à matrice polymère.

Effectivement, les résultats obtenus dans le cadre de cette étude indiquent que l'augmentation de la fraction volumique des fibres entraîne une élévation de la masse volumique, de la contrainte à la rupture ainsi que des modules de Young dans les directions longitudinale et transversale. En parallèle, une réduction de la déformation à la rupture est observée. Ces évolutions traduisent un renforcement de la rigidité du composite dans l'axe des fibres, tandis que ses performances mécaniques restent limitées dans la direction transversale, les fibres n'y contribuant que faiblement au soutien mécanique. Par ailleurs, il a été démontré que le composite renforcé de fibres de bore (PEHD/B) présente des propriétés mécaniques supérieures à celles du système (PEHD/Kevlar 49), en raison de la plus grande rigidité intrinsèque des fibres de bore.

Les troisième et quatrième volets de l'étude ont été consacrés à la modélisation du comportement thermique des composites (HDPE/TiB₂), en intégrant l'effet des interfaces parfaites et imparfaites ainsi que la géométrie des particules de renfort. Les modèles de Hashin-Shtrikman et de Hasselman-Johnson ont été mobilisés pour quantifier l'impact des paramètres microstructuraux sur la conductivité thermique globale.

L'ensemble des travaux présentés dans cette étude a permis d'analyser en profondeur l'impact de plusieurs paramètres clés sur la conductivité thermique effective des composites polymères

Conclusions et Perspectives

chargés en TiB_2 , notamment la fraction volumique du renfort, la géométrie et l'orientation des particules, ainsi que la qualité de l'interface entre la matrice et le renfort.

Les résultats obtenus montrent que l'augmentation de la fraction volumique de TiB_2 entraîne des effets contrastés selon la nature de l'interface : une interface parfaite favorise une nette amélioration de la conductivité thermique, tandis qu'une interface imparfaite agit comme une barrière au transfert thermique, induisant une diminution des performances globales du matériau. Par ailleurs, la géométrie des particules joue un rôle déterminant : les particules sphériques, en raison de leur symétrie et de leur répartition isotrope, permettent une meilleure homogénéité de la conduction thermique, contrairement aux particules cylindriques orientées perpendiculairement au flux thermique, qui perturbent les chemins de transfert.

La comparaison entre les différents cas étudiés met, donc, en évidence que la configuration optimale, en vue d'améliorer la conductivité thermique d'un composite à matrice polymère, repose sur une interface de haute qualité et une distribution de particules adaptée à la direction du flux thermique. Ces conclusions ouvrent la voie à des stratégies de conception avancées pour le développement de matériaux composites à hautes performances thermiques, particulièrement adaptés aux applications nécessitant une gestion thermique efficace.

Une analyse complémentaire des flux thermiques et des résistances thermiques a également été menée afin d'approfondir la compréhension des mécanismes de transfert de chaleur au sein de ces matériaux composites. L'étude du transfert thermique dans le composite (HDPE/ TiB_2) a permis de mettre en évidence l'influence significative des paramètres géométriques, en particulier du rayon radial, sur les mécanismes de conduction thermique dans les différentes phases du matériau. Grâce à une approche combinant modélisation théorique et simulation numérique sous COMSOL Multiphysics, il a été montré que la variation du rayon radial affecte directement la distribution des flux thermiques ainsi que l'évolution des résistances thermiques au niveau du renfort, de l'interface et de la matrice.

Les résultats obtenus indiquent que l'augmentation du rayon radial conduit à une diminution de la résistance thermique totale du composite, ce qui se traduit par une amélioration du transfert thermique global à travers le matériau. Cette évolution résulte de l'effet combiné des variations des résistances thermiques dans les différentes phases, mettant en évidence le rôle essentiel des paramètres géométriques dans l'optimisation des performances thermiques des composites.

Ces observations soulignent l'importance d'une conception géométrique adaptée pour le développement de matériaux composites à meilleures performances thermiques. Elles ouvrent également des perspectives intéressantes pour des études futures intégrant d'autres paramètres

Conclusions et Perspectives

influent, tels que la morphologie des particules de renfort, les propriétés interfaciales ou encore les couplages thermomécaniques, afin de mieux prédire et optimiser le comportement thermique global des composites polymères avancés.

Enfin, la dernière partie s'est focalisée sur l'étude de la conductivité électrique des nanocomposites (PS/Gn) et (PVDF/Gn). À l'aide des modèles de Wiener et de Deng-Zheng, l'impact de la fraction volumique, de la géométrie, de la dispersion des charges ainsi que des propriétés intrinsèques des matrices a été examiné. Par ailleurs, un modèle fondé sur la loi de puissance a été développé et étendu pour permettre également la prédiction de la résistivité électrique, en tenant compte de l'effet de l'interphase et de la distribution spatiale des nano-feuillets de graphène.

L'ensemble de ces investigations a mis en évidence l'importance des interactions interfaciales, de la morphologie des renforts et de leur distribution dans la matrice, dans l'optimisation des propriétés fonctionnelles des matériaux composites étudiés. Ces résultats constituent une base solide pour le développement de matériaux polymères multifonctionnels, destinés à des applications avancées dans les domaines de l'électronique, de l'énergie, de l'aéronautique ou encore du biomédical.

Les résultats obtenus dans le cadre de ce travail ouvrent plusieurs perspectives de recherche pour le développement futur de matériaux composites et nanocomposites à hautes performances. Tout d'abord, il serait pertinent d'approfondir l'étude des interfaces matrice-renfort à l'échelle nanométrique, notamment à travers des approches de modélisation multiphysiques couplant mécanique, thermique et électrique.

Par ailleurs, l'utilisation de renforts hybrides, combinant par exemple des nano-feuillets de graphène avec d'autres nanoparticules comme les nanotubes de carbone ou les oxydes métalliques, pourrait permettre de tirer parti des effets synergiques pour optimiser simultanément plusieurs propriétés fonctionnelles.

Enfin, la validation expérimentale des prédictions théoriques proposées dans ce travail constitue une étape indispensable. Elle permettrait non seulement de confirmer la robustesse des modèles utilisés, mais également d'adapter ces derniers à des conditions de fonctionnement réelles, notamment en environnement extrême ou sous sollicitations multiples. Ces perspectives s'inscrivent dans une dynamique de recherche visant à concevoir des matériaux polymères intelligents, adaptables, et capables de répondre aux exigences croissantes des technologies émergentes.

Résumé

Cette thèse porte sur l'étude et la modélisation des propriétés mécaniques, thermiques et électriques des composites à matrice polymère, en mettant particulièrement en lumière l'effet des renforts et des interactions interfaciales. Dans un premier temps, l'influence des fibres de Bore et de Kevlar 49 sur les propriétés mécaniques du polyéthylène haute densité (PEHD) a été analysée théoriquement, en évaluant leur impact sur la masse volumique, le module d'élasticité, la déformation à la rupture et la contrainte maximale supportée. La seconde partie s'intéresse à la modélisation de la conductivité thermique des composites (PE/TiB₂), en tenant compte à la fois des interfaces parfaites et imparfaites ainsi que de différentes géométries de renforts (sphériques et cylindriques). Les modèles de Hashin-Shtrikman et de Hasselman-Johnson ont été utilisés pour quantifier les effets des paramètres microstructuraux sur les performances thermiques globales. Une troisième étude est consacrée à l'analyse des mécanismes de transfert thermique internes, notamment par l'étude des flux de chaleur ainsi que des résistances thermiques du renfort, à l'interface et de la matrice. Enfin, la conductivité et la résistivité électrique des nanocomposites polymères à base de graphène, tels que le (PS/Gn) et le (PVDF/Gn), a été étudiée. À l'aide des modèles de Wiener, de Deng-Zheng et de loi de puissance, l'impact de la taille, de la forme et de la dispersion des nano-feuillets de graphène a pu être évalué. Les résultats obtenus soulignent l'importance de la nature du renfort, de la qualité de l'interface et de la structuration interne pour l'optimisation des propriétés fonctionnelles des composites. Ce travail ouvre la voie au développement de matériaux multifonctionnels destinés à des applications avancées dans les domaines de l'électronique, de l'aéronautique, de l'automobile, de l'énergie et du biomédical.

Mots clé : Matériau composite, Polymère, Propriétés Mécaniques, Thermiques et Électriques, PE, TiB₂, Bore, Kevlar 49, Graphène, PS, PVDF.

Abstract

This thesis focuses on the study and modeling of the mechanical, thermal, and electrical properties of polymer matrix composites, with particular emphasis on the influence of reinforcements and interfacial interactions. First, the influence of Boron and Kevlar 49 fibers on the mechanical properties of high-density polyethylene (HDPE) was theoretically analyzed by evaluating their impact on density, elastic modulus, elongation at break, and ultimate tensile strength. The second part deals with the modeling of the thermal conductivity of (PE/TiB₂) composites, considering both perfect and imperfect interfaces, as well as different reinforcement geometries (spherical and cylindrical). The Hashin-Shtrikman and Hasselman-Johnson models were used to quantify the effects of microstructural parameters on overall thermal performance. A third study focuses on analyzing internal heat transfer mechanisms, particularly by investigating heat fluxes and the thermal resistances of the reinforcement, at the interface and of the matrix. Finally, the electrical conductivity and resistivity of graphene-based polymer nano-composites, such as (PS/Gn) and (PVDF/Gn), was studied. Using the Wiener, Deng-Zheng, and power law models, the impact of the size, shape, and dispersion of graphene nanosheets was assessed. The results highlight the importance of the type of reinforcement, interface quality, and internal structuring in optimizing the functional properties of composites. This work paves the way for the development of multifunctional materials for advanced applications in electronics, aerospace, automotive, energy, and biomedical sectors.

Keywords: Composite material, Polymer, Mechanical, Thermal and Electrical properties, PE, TiB₂, Boron, Kevlar 49, Graphene, PS, PVDF.

المخلص

تركز هذه الأطروحة على دراسة ونمذجة الخصائص الميكانيكية والحرارية والكهربائية للمواد المركبة ذات المصفوفة البوليمرية، مع إيلاء اهتمام خاص لتأثير المواد الداعمة والتفاعلات البينية. في البداية، تم تحليل تأثير ألياف البور وكيفلر 49 نظريًا على الخصائص الميكانيكية للبولي إيثيلين عالي الكثافة (HDPE)، من خلال تقييم تأثيرها على الكثافة، ومعامل المرونة، والانفعال عند الكسر، والحد الأقصى للإجهاد المدعوم. الجزء الثاني يركز على نمذجة التوصيلية الحرارية للمواد المركبة (PE/TiB₂)، مع أخذ كل من الواجهات المثالية وغير المثالية بعين الاعتبار، بالإضافة إلى أشكال مختلفة من التعزيزات) كروية واسطوانية. (تم استخدام نماذج هاشين-شتريكمان وهاسيلمان-جونسون لتحديد تأثير المعلمات البنائية المجهرية على الأداء الحراري الكلي. وُجّهت دراسة ثالثة لتحليل آليات انتقال الحرارة الداخلية، خاصة من خلال دراسة تدفقات الحرارة والمقاومات الحرارية للتقوية، عند الواجهة والمصفوفة. وأخيرًا، تمت دراسة التوصيلية والمقاومة الكهربائية للمواد النانوية المركبة البوليمرية المعتمدة على الغرافين، مثل (PS/Gn) و (PVDF/Gn) وباستخدام نماذج وينر، دينغ-تشنغ والقانون الأسّي، تم تقييم تأثير حجم وشكل وتوزيع أوراق الغرافين النانوية. وتؤكد النتائج أهمية نوع التعزيز وجودة الواجهة والبنية الداخلية في تحسين الخصائص الوظيفية للمواد المركبة. ويمهد هذا العمل الطريق لتطوير مواد متعددة الوظائف مخصصة لتطبيقات متقدمة في مجالات الإلكترونيات والطيران والسيارات والطاقة والمجال الطبي.

الكلمات المفتاحية: مادة مركبة، بوليمر، خصائص ميكانيكية، حرارية وكهربائية، PE، TiB₂، البور، كيفلر 49، الغرافين، PS، PVDF.