

Dispositif de mesure de la conductivité thermique effective longitudinale de torons adapté à différents degrés de carbonisation.

Device for measuring the longitudinal effective thermal conductivity of strands adapted to different stages of carbonization.

Baptiste BOUYER ^{1,2,*}, Xavier TARDIF ², Célia MERCADER ³, Didier DELAUNAY ¹

¹ Université de Nantes, CNRS, Laboratoire de thermique et énergie de Nantes, LTeN, UMR 6607 - F-44000 Nantes, France

² Institut de Recherche Technologique (IRT) Jules Verne - 44340 Bouguenais, France.

³ Plateforme CANOE - 33600 Pessac, France

* auteur correspondant : baptiste.bouyer@univ-nantes.fr

Résumé – Un dispositif de mesure de conductivité thermique longitudinale de torons de fibres a été mis au point et modélisé par éléments finis. Le modèle numérique a permis de minimiser les pertes radiatives. Des mesures de conductivité thermique ont été réalisées sur trois échantillons étalons représentatifs de la gamme de mesure et valident ce dispositif de $0,1 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ à $100 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ainsi que sur des échantillons constitués de fibres de viscose et de fibres de carbone T300 ce qui a permis de valider le dispositif pour la caractérisation des fibres de précurseur aux fibres de carbone.

Mots-clés : Conductivité thermique ; Fibres ; Torons ; Plaque chaude gardée.

Abstract – A device for for fibers axial thermal conductivity measurement has been developed and modeled by finite elements. The numerical model made it possible to minimize the radiative losses. Thermal conductivity measurements have been performed on three standard samples representative of the measurement range and validate this device from $0.1 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ to $100 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ as well as on samples made up of viscose fibers and T300 carbon fibers, which validated the device for the characterization of fiber strands from precursor fibers to carbon fibers.

Keywords: Thermal conductivity; Fibers; Strands; Guarded hot plate.

Nomenclature

	<i>Indices et exposants</i>		
L longueur, m			<i>num</i> numérique
P puissance, W	<i>chaud</i>	système de chauffage	<i>paroi</i> paroi
T température, K ou °C	<i>cond</i>	conduction	<i>rad</i> radiatif
	<i>ech</i>	échantillon	<i>regul</i> régulation
	<i>eff</i>	effective	<i>théo</i> théorique
	<i>elec</i>	électrique	x,y,z directions
λ conductivité thermique, $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	<i>froid</i>	système de refroidissement	

1. Introduction

Les fibres sont de plus en plus utilisées notamment comme renforts dans les matériaux composites. Selon la nature de ces fibres, la littérature fait état de conductivités thermiques très basses avec un ordre de grandeur de $0,1 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ pour les fibres les plus isolantes allant jusqu'à des valeurs très hautes, pouvant atteindre $100 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ [1] ou plus pour les fibres de carbone les plus conductrices. Les fibres sont rassemblées pour former des torons. La conductivité thermique effective des torons de fibres dépend non seulement du matériau des fibres mais aussi de leur morphologie [2]: nombre, diamètre, orientation (torsadé ou non), continuité des fibres, etc. Ainsi la caractérisation thermique des torons est une étape critique dans l'évaluation des propriétés thermiques des matériaux composites.

S'il existe aujourd'hui de nombreuses méthodes pour mesurer la conductivité thermique des fibres micrométriques avec la méthode 3ω [3] ou encore la méthode flash [4], seules quelques méthodes [5–7] permettent de mesurer la conductivité thermique de torons mais sont réservées aux fibres de conductivité thermique supérieure à $10 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$.

Compte tenu de la spécificité des fibres, un moyen de mesure direct de conductivité thermique dédié aux fibres semble pertinent.

Nous présentons ici un nouvel appareil permettant de mesurer la conductivité thermique longitudinale de torons de fibres sur trois ordres de grandeur de $0,1 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ à $100 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ soit de la fibre de précurseur à la fibre de carbone.

2. Méthodologie

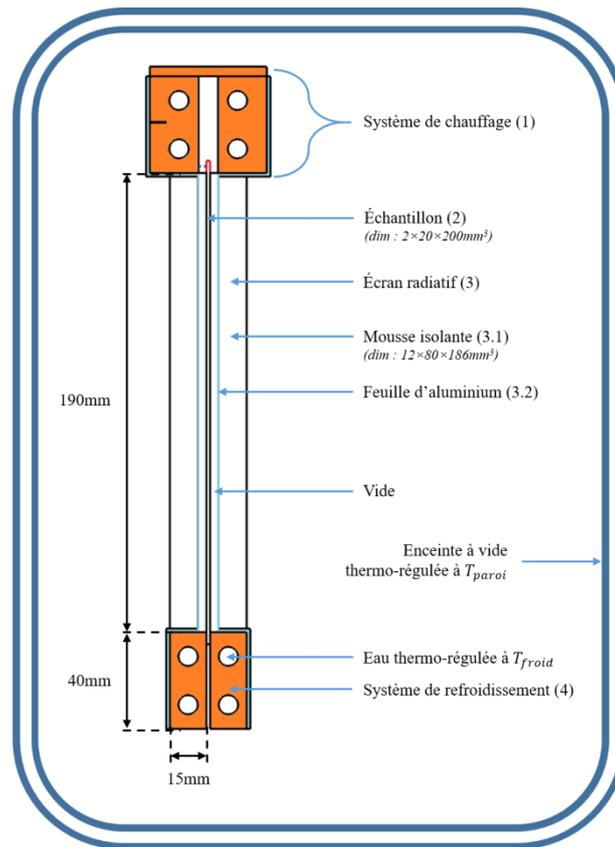
2.1. Principe de la méthode

La méthode est inspirée de la technique de la plaque chaude gardée. La résistance thermique d'un échantillon est obtenue par la loi de Fourier en 1D en régime permanent. De cette résistance thermique est déduite la conductivité thermique du matériau connaissant les dimensions de l'échantillon. Généralement l'échantillon est une plaque soumise à un gradient de température unidirectionnel, le dispositif étant isolé thermiquement, tel que les pertes de chaleur latérales soient négligeables. La détermination de la conductivité thermique, λ repose alors sur la mesure de la différence de température ΔT entre les faces séparées d'une distance L et la mesure du flux de chaleur Φ traversant l'échantillon de section, correspondant à la puissance électrique $Pelec$ consommée de l'élément chauffant.

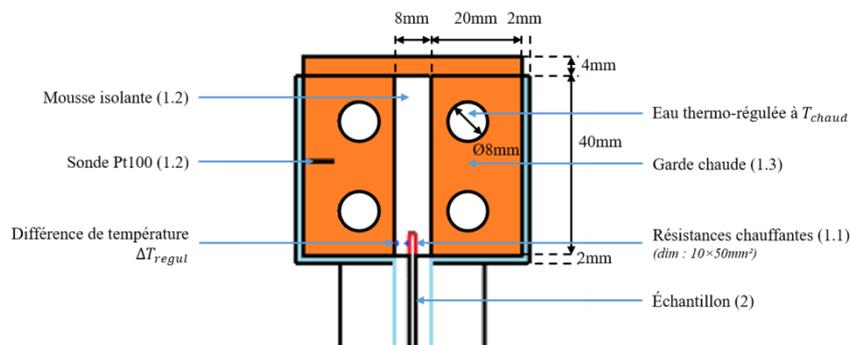
Dans le cas de la plaque chaude gardée adaptée aux torons de fibres, l'échantillon est constitué de quelques torons identiques alignés, de plusieurs centimètres de longueur pour un diamètre millimétrique. La surface latérale de l'échantillon est donc grande devant sa section. Aussi une attention particulière doit être apportée aux pertes de chaleur, notamment radiatives, dans ce dispositif.

2.2. Dispositif expérimental

Le dispositif est représenté schématiquement sur la Figure 1. Les torons de fibres (2) sont maintenus tendus verticalement entre un système de chauffage (1) et un système de refroidissement (4). La température de l'échantillon est mesurée avec des thermocouples de type K.



a) Dispositif entier (enceinte à vide non à l'échelle)



b) Système de chauffage

Figure 1 : a) Schéma du dispositif entier, b) Schéma du système de chauffage

Le système de chauffage (1) est constitué de résistances chauffantes (1.1) dont la puissance électrique consommée est mesurée et entre lesquelles est maintenu l'échantillon (2). Cet ensemble est isolé thermiquement par une mousse (1.2) de conductivité thermique $0,03 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ le tout étant entouré par une garde-chaude (1.3) constituée d'échangeurs de chaleur en cuivre dans lesquels circule de l'eau régulée à la température T_{chaud} . Le système de refroidissement (4) est constitué d'échangeurs de chaleur en cuivre dans lesquels circule également de l'eau régulée à la température T_{froid} , telle que T_{chaud} soit supérieure à T_{froid} .

Un écran radiatif (3) fixé aux échangeurs est constitué de mousse isolante (3.1) et de feuilles d'aluminium adhésives (3.2) entourant l'échantillon pour limiter les échanges de chaleur par rayonnement entre l'échantillon et son environnement. Seules les surfaces de l'écran en regard avec l'échantillon sont munies d'aluminium. Le dispositif est placé dans une

enceinte elle-même régulée en température à T_{paroi} et sous vide primaire à 10^{-4} mbar pour éviter les pertes de chaleur par convection entre l'échantillon et l'air ambiant. Le vide permet également de retirer le gaz interstitiel présent dans les torons, ainsi la conductivité thermique mesurée est la conductivité thermique du matériau seul et non la conductivité thermique effective. L'eau thermorégulée circulant dans chacune des gardes provient de bains thermostatés à circulation disposant de leur propre système de régulation PID. Les résistances chauffantes (1.1) présentent chacune une résistance électrique de $60,3\Omega$ et sont connectées en parallèle à une source de courant continu Keithley 6221 régulée par PID. Les paramètres de la régulation sont évalués avant chaque mesure. Le système de régulation ainsi que l'acquisition des températures ont été réalisés en utilisant le logiciel LabVIEW™ (National Instrument Corp.)

2.3. Modélisation numérique du dispositif

Un modèle numérique 3D de l'ensemble du dispositif représenté sur la figure 1 a été réalisé sur le logiciel COMSOL Multiphysics® pour appréhender les pertes de chaleur par rayonnement entre l'échantillon et son environnement, rappelons que l'on travaille sous un vide de 10^{-4} mbar et que les pertes convectives sont négligeables. Les transferts radiatifs sont modélisés par la méthode des radiosités [8] et les facteurs de forme déterminés par la méthode des hémicubes [9] avec une résolution de 512. L'échantillon modélisé est une bande de PMMA de 200 mm de longueur, 20 mm de largeur et de 1,5 mm d'épaisseur. La conductivité thermique du PMMA introduite dans le modèle est de $0,18 W.m^{-1}.K^{-1}$. Cet échantillon sera utilisé ensuite comme étalon pour caractériser le dispositif expérimental. On impose les conditions aux limites suivantes : température de paroi imposée sur les parois extérieures de l'enceinte à vide, flux de chaleur convectif imposé sur les parois des canaux des échangeurs de chaleurs dans lesquels circulent de l'eau imposée à 30°C pour le système de chauffage et 20°C pour le système de refroidissement. L'ensemble des surfaces libres du dispositif ainsi que les surfaces intérieures de l'enceinte sont considérées comme surfaces diffusives : deux surfaces en regard à des températures différentes échangent de la chaleur par rayonnement. L'ensemble est à température ambiante à l'instant initial. Le maillage est constitué d'environ 2.10^5 éléments tétraédriques.

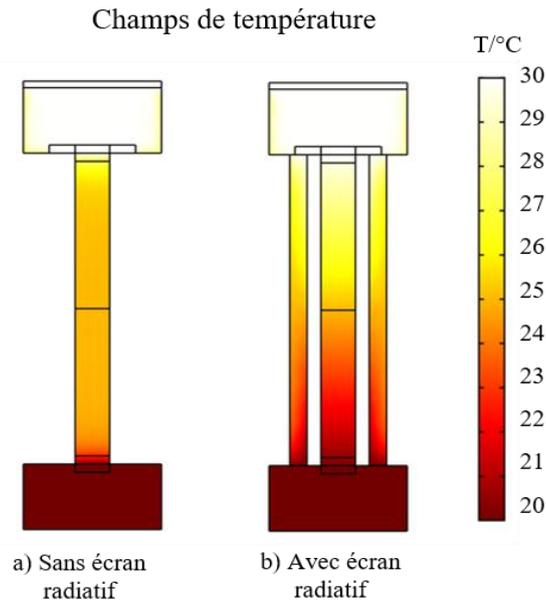
L'étude est réalisée en régime permanent. L'utilisation du bouclier radiatif, différentes températures de paroi et différentes longueurs d'échantillons ont été testées. Les configurations des simulations et leurs résultats sont rapportés dans le Tableau 1. Le flux de chaleur par conduction théorique est obtenu en négligeant toutes pertes de chaleur.

N° de simulation	#1	#2	#3	#4	#5	#6
Écran radiatif	Non	Oui	Oui	Oui	Oui	Oui
$T_{paroi} / ^\circ C$	25	25	20	30	25	25
$L_{eff} \text{ éch} / mm$		190			140	90
$\Phi_{cond} \text{ théo} / W$		$-2,84.10^{-4}$			$-3,86.10^{-4}$	$-6,0.10^{-4}$
$\Phi_{rad} \text{ num} / W$	$-2,59.10^{-4}$	$8,71.10^{-6}$	$-5,74.10^{-4}$	$5,61.10^{-4}$	$2,21.10^{-5}$	$5,47.10^{-5}$
$ \Phi_{rad} \text{ num} / \Phi_{cond} \text{ z num} $	93%	3,1%	203%	198%	5,8%	9,3%
$ \Phi_{cond} \text{ z num} / \Phi_{cond} \text{ théo} $	98%	98,4%	99,6%	99,4%	98,7%	98,2%
$ \Phi_{cond} \text{ x} / \Phi_{cond} \text{ z} $	0,0%	1,2%	0,1%	0,1%	0,0%	0,3%
$ \Phi_{cond} \text{ y} / \Phi_{cond} \text{ z} $	16%	1,6%	2,7%	2,6%	0,6%	0,6%

Tableau 1 : Simulation numérique du dispositif : paramètres et résultats

Les champs de température obtenus avec et sans écran radiatif pour une température de paroi de 25°C sont représentés sur la **Figure 2**. On peut noter que le gradient de température

dans l'échantillon est unidirectionnel uniquement en présence de l'écran radiatif. Dans le cas contraire, l'échantillon est en grande partie à la température de paroi : les transferts radiatifs entre l'échantillon et la paroi ne sont pas négligeables et atteignent le même ordre de grandeur que le flux de chaleur par conduction théorique, ce qui invaliderait le principe du dispositif. La présence de l'écran radiatif est donc nécessaire mais non suffisante pour garantir des transferts radiatifs négligeables. En effet, en présence de l'écran les pertes radiatives peuvent atteindre le double du flux de chaleur par conduction recherché lorsque la température de paroi est égale à la température de l'un des échangeurs (simulation #3 et #4). En revanche les pertes de chaleur par rayonnement sont minimisées lorsque la température de paroi est égale à la température moyenne des systèmes de chauffage et de refroidissement (simulation #2).



*Figure 2 : Champ de température dans le dispositif :
a) sans écran radiatif et b) avec écran radiatif*

Les simulations réalisées montrent également l'influence la longueur de l'échantillon : en diminuant la longueur de l'échantillon, la résistance thermique de l'échantillon diminue également conduisant à une augmentation du flux de chaleur par conduction. Dans le même temps, le flux de chaleur radiatif augmente également, ce qui peut être attribué à l'effet de bords. La diminution de la longueur de l'échantillon entraîne une augmentation du facteur de forme géométrique entre les systèmes de chauffage ou de refroidissement et l'échantillon et donc à une augmentation des transferts de chaleur aux extrémités de l'échantillon. Les rapports des flux de chaleur radiatif et conductif présentés dans le **Tableau 1** indiquent que les pertes radiatives augmentent plus vite que le flux conductif, un échantillon plus long est donc préférable.

Un échantillon plus long est également avantageux pour d'autres raisons: il permet une instrumentation thermique plus facile et plus précise de l'échantillon puisque le gradient de température est plus faible et donc la mesure de température moins sensible à l'emplacement des capteurs tels que les thermocouples. Enfin, une plus grande résistance thermique de l'échantillon rend les résistances de contact, qui ne dépendent pas de la longueur de l'échantillon, relativement plus faibles et contribuent ainsi à les négliger. Des mesures seront effectuées sur des échantillons de longueur différente dans la partie 3 pour s'assurer que les résistances de contact n'affectent pas le résultat.

2.4. Détermination de la conductivité thermique longitudinale

Les résistances chauffantes sont réglées en courant de telle sorte à annuler la différence de température ΔT_{regul} entre les résistances chauffantes et la garde. Ainsi lorsque le régime permanent est atteint, le flux de chaleur traversant l'échantillon correspond au flux de chaleur généré par les résistances chauffantes et donc à leur consommation électrique.

3. Résultats

3.1. Validation expérimentale du dispositif

Des mesures ont été réalisées sur trois échantillons représentatifs de la gamme de mesure recherchée. Le premier est une bande de PMMA de dimension $1,5\text{ mm} \times 20\text{ mm} \times 200\text{ mm}$, le second une bande d'inox 316 de dimension $2\text{ mm} \times 20\text{ mm} \times 200\text{ mm}$ et le troisième est une bande d'aluminium 2017A de même dimension que le second échantillon. Une attention particulière est portée sur la régulation de la température des parois de l'enceinte, devant être égale à la moyenne des températures des systèmes de chauffage et de refroidissement. La conductivité thermique obtenue expérimentalement λ_{exp} est comparée à la conductivité thermique du matériau correspondant trouvé dans la littérature [10,11] λ_{lit} dans le **Tableau 2**. La conductivité thermique du PMMA est extraite de la référence [11]. Elle dépend de la façon dont l'échantillon est obtenu (coulé ou extrudé) mais une valeur moyenne de $0,19 \pm 0,01\text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ peut être admise.

Matériau	PMMA	Inox 316	Aluminium 2017A
$\lambda_{exp} / (W.m^{-1}.K^{-1})$	0,203	16,19	133,4
$\lambda_{lit} / (W.m^{-1}.K^{-1})$	0,19 [11]	16,2 [10]	134 [10]

Tableau 2 : Résultats des mesures de conductivité thermique sur matériaux massifs de conductivité thermique connue

Une grande précision est obtenue pour les échantillons métalliques. En revanche un écart relatif plus important est obtenu pour l'échantillon le moins conducteur de chaleur, comme on pouvait s'y attendre, les pertes radiatives étant relativement plus grandes par rapport au flux de chaleur par conduction qui traverse l'échantillon.

3.2. Résultats expérimentaux sur fibres

L'appareil étant validé sur des échantillons massifs, des mesures ont ensuite été effectuées sur des torons de fibres. Quatre mesures ont été effectuées sur des échantillons constitués de 10 torons de 6000 fibres de carbone T300 de $6\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre et de 200mm de hauteur pour les 2 premières mesures et de 150mm pour les deux autres. Les résultats montrent que la conductivité thermique ne change pas avec la longueur de l'échantillon et confirment que les résistances de contact thermique sont négligeables. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 3 et comparés aux conductivités thermiques trouvées dans la littérature [3,12–16]]. Les conductivités thermiques obtenues expérimentalement avec le nouveau dispositif sont comprises entre $8,4\text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ et $8,7\text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ et sont en bon accord avec la valeur moyenne des conductivités thermiques disponibles dans la littérature (valeur moyenne de $8,37\text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$), ce qui valide l'utilisation de ce nouveau dispositif de mesure de la conductivité thermique longitudinale effective de torons de fibres conductrices. La valeur moyenne n'est certes pas un très bon estimateur mais compte tenu de la dispersion des résultats, y compris entre les différents constructeurs [12,13] il est difficile de trouver une référence.

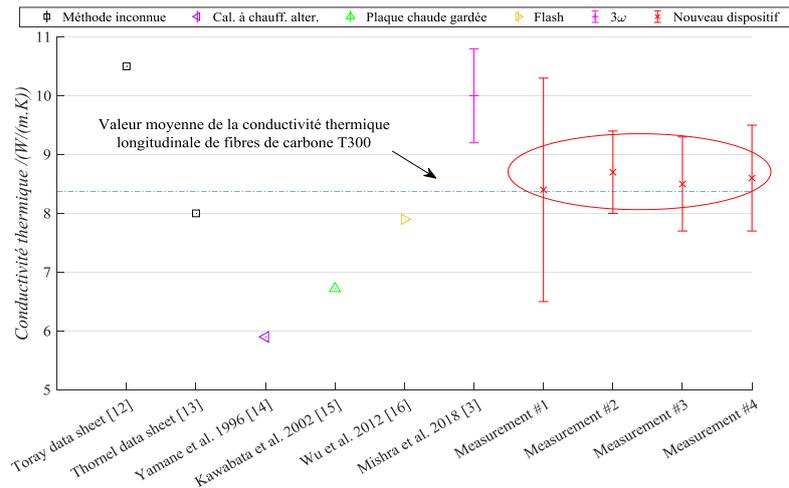


Figure 3 : Conductivité thermique axiale des fibres de carbone T300: état de l'art et mesures

Enfin, des mesures ont été réalisées sur des fibres isolantes de viscose utilisée notamment comme précurseur pour la fabrication de fibre de carbone. Le nombre de torons utilisés, la différence de température appliquée, la puissance électrique mesurée et la conductivité thermique obtenue sont présentés dans le **Tableau 3**. Kawabata et al. [15] ont également mesuré la conductivité thermique de fibres de viscose et obtiennent une valeur de $1.077 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, ce qui est très proche des valeurs expérimentales obtenues. Le nouveau dispositif est donc également validé pour les mesures de conductivité thermique de fibres isolantes.

Numéro de mesure	#1	#2	#3
Nombre de fibres	$22 \times 1k$	$58 \times 1k$	$58 \times 1k$
$\Delta T / K$	8,65	30,01	29,93
P_{elec} / W	$1,33.10^{-4}$	$1,08.10^{-3}$	$1,16.10^{-3}$
$\lambda_{exp} / (\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1})$	$1,08 \pm 0,07$	$0,96 \pm 0,04$	$1,03 \pm 0,05$

Tableau 3 : Résultats des mesures de conductivité thermique axiale sur des fibres de viscose

4. Conclusion

Un dispositif de mesure de conductivité thermique longitudinale de torons de fibre inspiré de la méthode de la plaque chaude gardée a été mis au point et modélisé numériquement par éléments finis, réalisé, testé et validé. Le modèle numérique a permis de vérifier que les pertes de chaleur par rayonnement sont minimisées si la température de paroi est égale à la température moyenne des systèmes de chauffage et de refroidissement en présence d'un écran radiatif. Des mesures expérimentales ont été conduites sur trois échantillons étalons représentatifs de la gamme de mesure du dispositif et valident le dispositif sur la gamme de conductivité thermique recherchée : de $0,1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à $100 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Ensuite des mesures ont été réalisées sur des torons de fibres isolantes (viscose) et conductrices (T300) et comparées à la littérature ce qui a permis de valider le dispositif pour les mesures de conductivité thermique de torons de fibres, des fibres de précurseur aux fibres de carbone.

Références

- [1] G. Dupupet, Fibres de carbone, Techniques de l'ingénieur. (2008) 1-19.
- [2] R.S. Rengasamy, S. Kawabata, Computation of thermal conductivity of fibre from thermal

- conductivity of twisted yarn, *Indian Journal of Fibre & Textile Research*. 27 (2002) 342-345. [http://nopr.niscair.res.in/bitstream/123456789/23185/1/IJFTR_27\(4\)_342-345.pdf](http://nopr.niscair.res.in/bitstream/123456789/23185/1/IJFTR_27(4)_342-345.pdf) (consulté le 3 octobre 2019).
- [3] K. Mishra, B. Garnier, S. Mandal, N. Boyard, S. Le Corre, Thermal properties measurement of single fiber with the 3 omega method, in: 12th International Conference on Composite Science and Technology, Sorrento, Italy, 2018: p. 12.
- [4] M.T. Demko, Z. Dai, H. Yan, W.P. King, M. Cakmak, A.R. Abramson, Application of the thermal flash technique for low thermal diffusivity micro/nanofibers, *Review of Scientific Instruments*. 80 (2009) 1-3. <https://doi.org/10.1063/1.3086310>.
- [5] L. Piraux, J.-P. Issi, P. Coopmans, Apparatus for thermal conductivity measurements of thin fibres, *Measurement*. 5 (1987) 2-5.
- [6] N.C. Gallego, D.D. Edie, B. Nysten, J.-P. Issi, J.W. Treleven, G. V. Deshpande, Thermal conductivity of ribbon-shaped carbon fibers, *Carbon*. 38 (2000) 1003-1010. [https://doi.org/10.1016/S0008-6223\(99\)00203-1](https://doi.org/10.1016/S0008-6223(99)00203-1).
- [7] A.A. Candadai, J.A. Weibel, A.M. Marconnet, A Measurement Technique for Thermal Conductivity Characterization of Ultra-High Molecular Weight Polyethylene Yarns Using High-Resolution Infrared Microscopy, in: 2019 18th IEEE Intersociety Conference on Thermal and Thermomechanical Phenomena in Electronic Systems (ITherm), IEEE, Las Vegas, 2019: p. 490-497. <https://doi.org/10.1109/ITHERM.2019.8757385>.
- [8] COMSOL 5.3 Heat Transfer Module User's Guide, s. d. www.comsol.com/blogs (consulté le 5 avril 2020).
- [9] M.F. Cohen, D.P. Greenberg, The hemi-cube, a radiosity solution for complex environments, in: SIGGRAPH'85, San Francisco, USA, 1985: p. 31-40.
- [10] ASM Aerospace Specification Metals Inc., asm.matweb.com, (2019). <http://www.aerospacemetals.com/aluminum-distributor.html> (consulté le 4 février 2019).
- [11] M. Rides, J. Morikawa, L. Halldahl, B. Hay, H. Lobo, A. Dawson, C. Allen, Intercomparison of thermal conductivity and thermal diffusivity methods for plastics, *Polymer Testing*. 28 (2009) 480-489. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2009.03.002>.
- [12] Torayca, T300 DATA SHEET, 2018. www.toraycma.com (consulté le 15 avril 2019).
- [13] Cytec Engineered Materials, THORNEL® T-300 PAN-BASED FIBER, 2012. www.cytec.com.
- [14] T. Yamane, S.I. Katayama, M. Todoki, I. Hatta, Thermal diffusivity measurement of single fibers by an ac calorimetric method, *Journal of Applied Physics*. 80 (1996) 4358-4365. <https://doi.org/10.1063/1.363394>.
- [15] S. Kawabata, R.S. Rengasamy, Thermal conductivity of unidirectional fibre composites made from yarns and computation of thermal conductivity of yarns, *Indian Journal of Fibre & Textile Research*. 27 (2002) 217-223. <http://nopr.niscair.res.in/handle/123456789/22853> (consulté le 20 septembre 2019).
- [16] G.-P. Wu, D.-H. Li, Y. Yang, C.-X. Lu, S.-C. Zhang, X.-T. Li, Z.-H. Feng, Z.-H. Li, Carbon layer structures and thermal conductivity of graphitized carbon fibers, *Journal of Materials Science*. 47 (2012) 2882-2890. <https://doi.org/https://doi.org/10.1007/s10853-011-6118-z>.

Remerciements

Dans un premier temps, nous remercions Nicolas Lefevre pour la pertinence de ses propos et d'autre part Arnaud Arrivé et Julien Aubril pour leur implication dans la réalisation de ce dispositif, tous trois travaillant pour le Service Études et Fabrication (SEF) du LTeN.

Ces travaux font partie du projet FORCE piloté par l'IRT Jules Verne (Institut français de recherche technologique des technologies de fabrication avancées pour les structures composites, métalliques et hybrides).