

Determination of thermal conductivity tensor and specific heat of composite materials

Methodology and experimental device

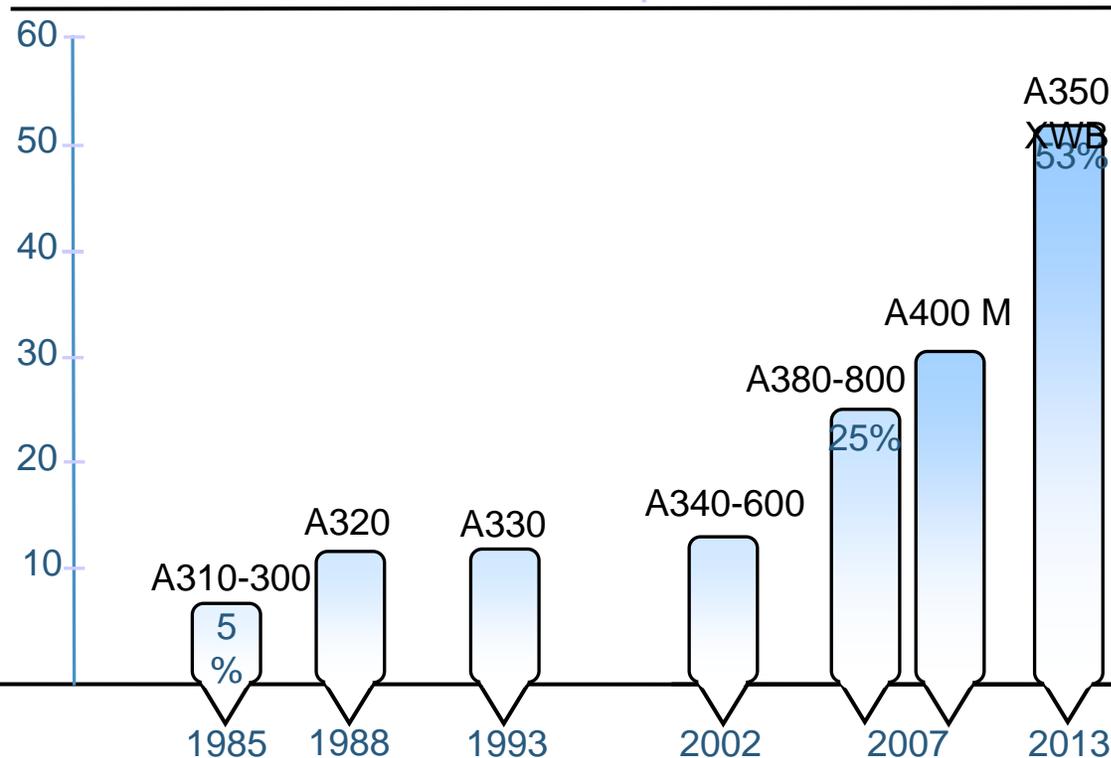


M. THOMAS, N. BOYARD, Y. JARNY and D. DELAUNAY

Contexte industriel



Évolution du ratio Poids composite / Poids structure (%)



- Remplacement de structures métalliques par des composites

- Principal problème: Divise λ par 100

- Problème de confinement de la chaleur, et autres...

- Nécessité de prévoir ces problèmes par des calculs numériques thermiques

- Besoin des propriétés thermiques des composites



Problématique



Quels matériaux composites ?

- Matériaux composites à matrice polymère : unidirectionnels, drapés, tissés.
- Matériaux généralement anisotropes.

Quelle gamme de température ?

- De la température ambiante à 200°C

Quelles propriétés thermiques ?

- Le tenseur de conductivité thermique: Λ_{Oxyz} (W/m.K)

Soit dans la base de ses directions principales:

- La chaleur spécifique: C_p (J/kg.K)

$$\Lambda_{Oxyz} = \begin{bmatrix} \lambda_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{zz} \end{bmatrix}$$

4 paramètres
à estimer:

$$\lambda_{xx}, \lambda_{yy}, \lambda_{zz}, C_p$$

Propriétés effectives de matériaux homogénéisés. La taille de matériau supérieure au Volume Élémentaire Représentatif.

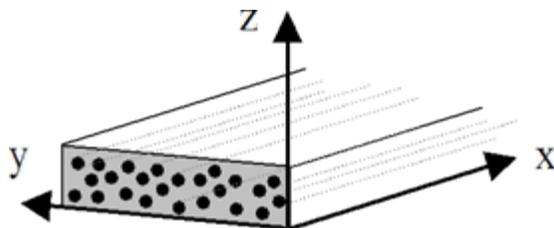
Contexte: Cross Bench SFT 2005

Tests croisés organisés par la SFT (Société française de thermique) et Airbus

- Laboratoires participants: EADS CCR Suresnes, CEA, DGA, ICAM, LCTS, LEMTA, LTN, Netzsch, ONERA.
- Objectif: Comparer les résultats obtenus par différentes méthodes de mesure des propriétés thermiques sur un même matériaux composite
- Échantillon: Carbone / Époxy, pure unidirectionnel (AS4/8552 fourni par Airbus)

Synthèse des résultats

- Densité: Dispersion de $\pm 1,5\%$
- Chaleur spécifique : $\pm 5\%$
- Diffusivités thermiques : $< \pm 5\%$
- Conductivité thermique selon Oz: $\pm 15\%$
- Conductivité thermique selon Ox : $\pm 15\%$
- Conductivité thermique selon Oy : $\pm 20\%$



Dispersion trop importante sur Λ_{oxyz}

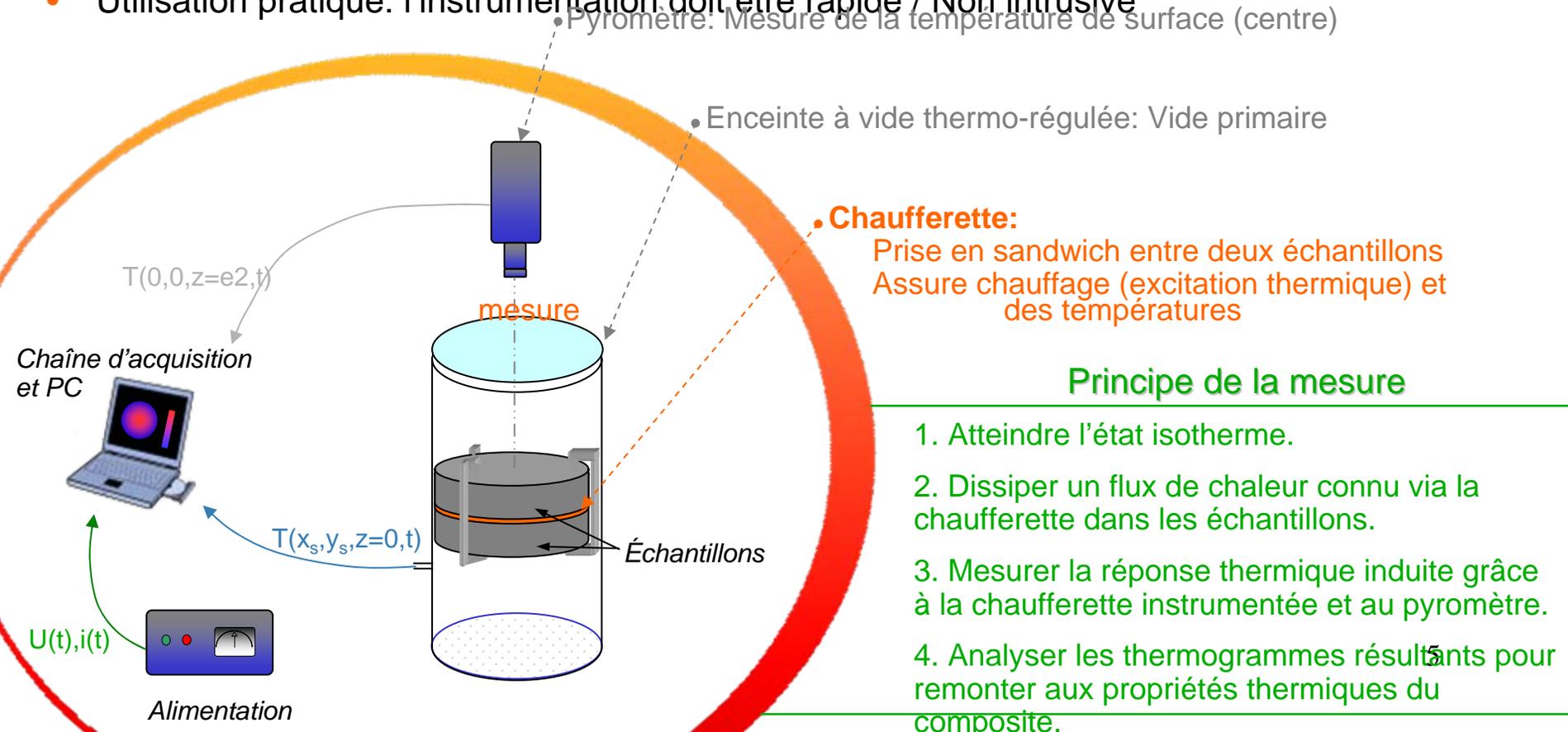
Nécessité de cumuler ou répéter les méthodes pour caractériser l'ensemble des propriétés

Peu de méthodes permettent de détecter les directions principales

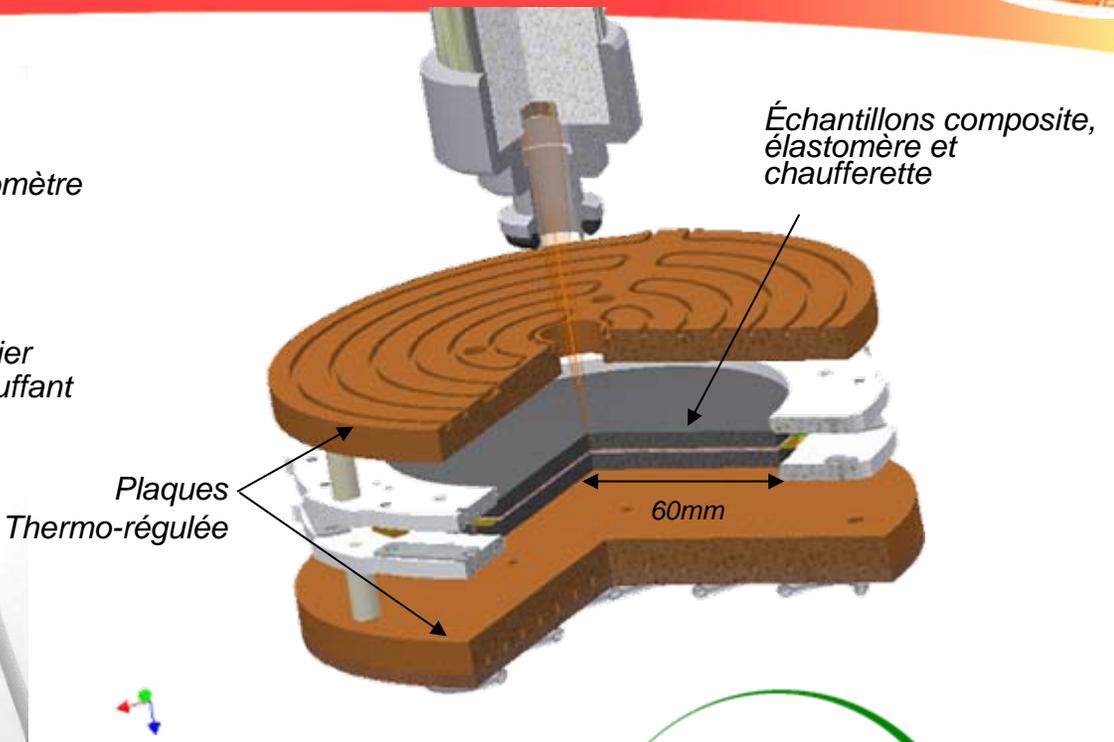
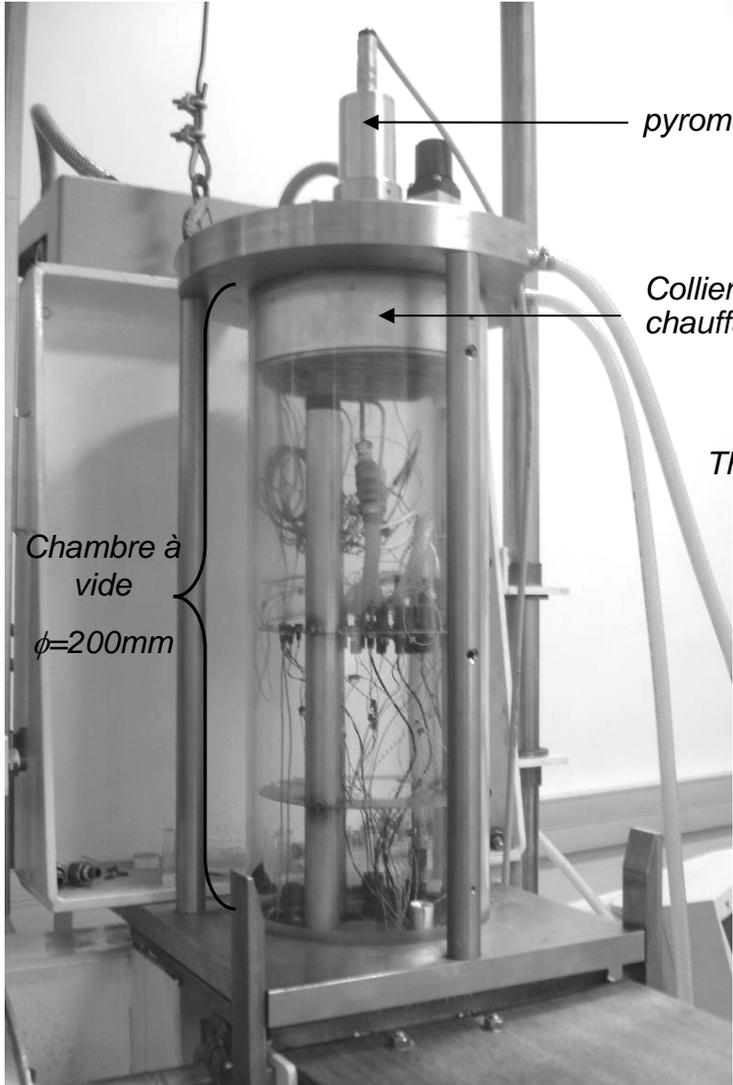
Développement d'une méthode spécifique de mesure

Objectifs :

- Développer une méthode de mesure capable de caractériser l'ensemble des composantes du tenseur de conductivité thermique, ainsi que la chaleur spécifique.
- Détecter les directions principales
- Utilisation pratique: l'instrumentation doit être rapide / Non intrusive

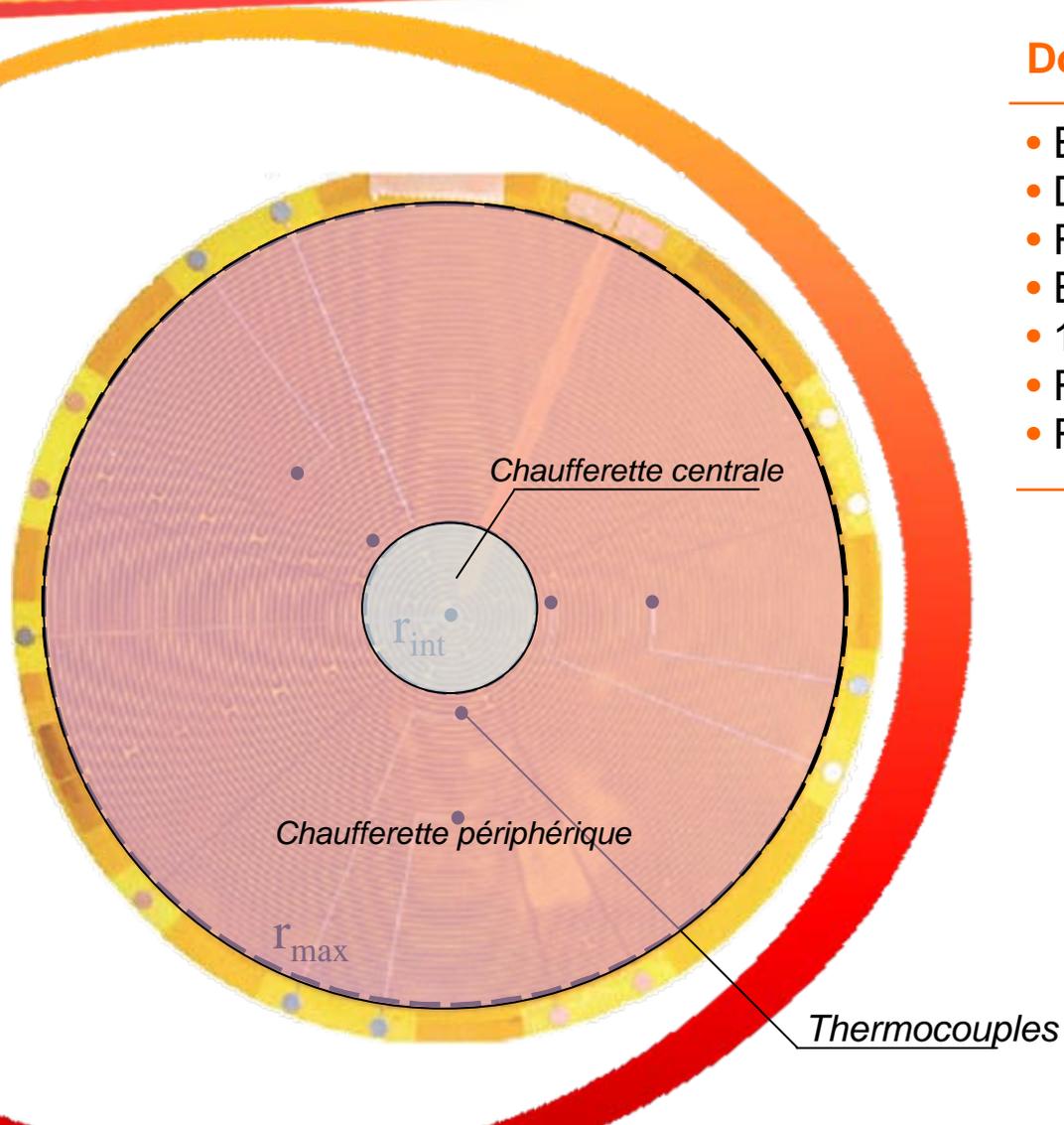


Présentation du banc de mesure



Mise en place d'une fine couche d'élastomère entre le composite et la chaufferette.

Présentation de la chauffeferette



Données techniques :

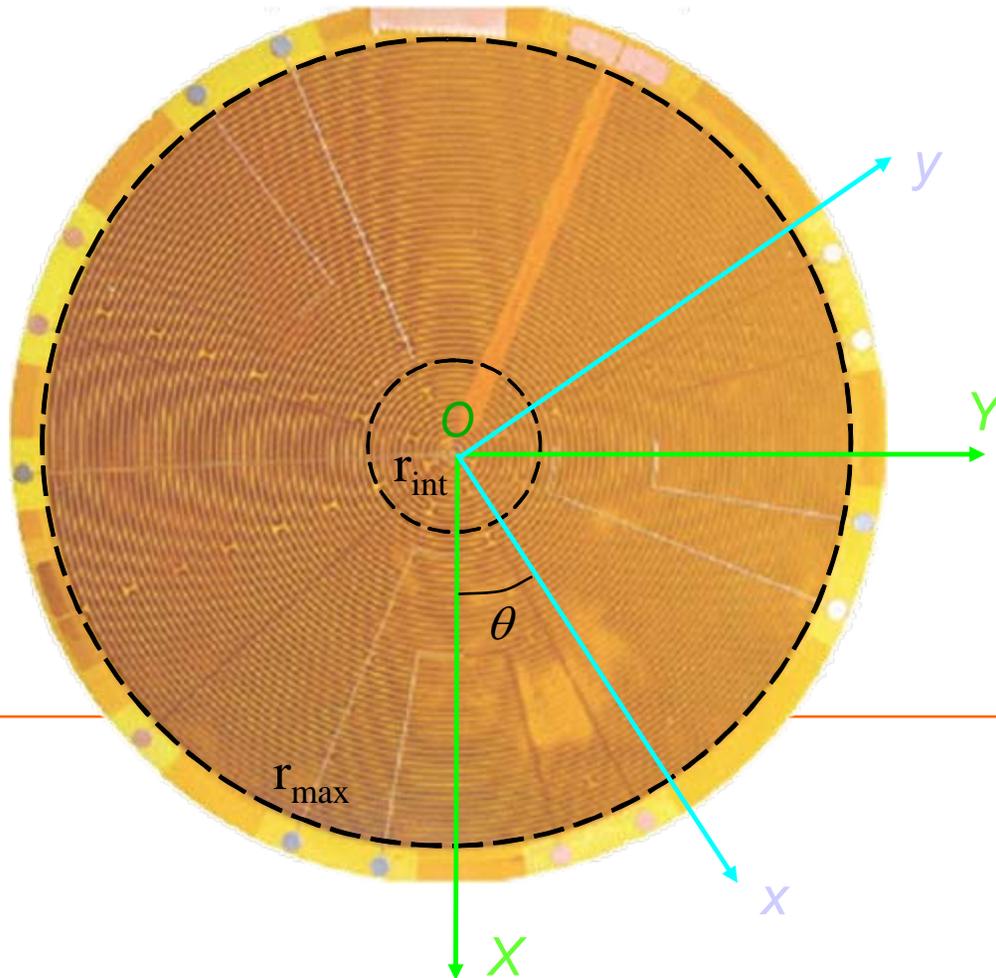
- Épaisseur: 0,5mm
- Diamètres: 120mm ($2r_{\max}$)
- Rayon intérieur: 4,5mm
- Épaisseur des pistes chauffantes: $25\mu\text{m}$
- 14 thermocouples
- Résistance chauffeferette centrale: $1,8 \Omega$
- Résistance chauffeferette périphérique: 326Ω

2 configurations de chauffage:

- A: Élément central
- B: Éléments central et périphérique

Repère de la chaufferette (**OXYZ**) est différent de celui du composite (**Oxyz**)

Question de repère...



Si dans son repère principal le tenseur de conductivité du composite s'exprime:

$$\Lambda_{Oxyz} = \begin{bmatrix} \lambda_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{zz} \end{bmatrix}$$

Dans le repère de la chaufferette il devient:

$$\Lambda_{OXYZ} = \begin{bmatrix} \lambda_{XX} & \lambda_{XY} & 0 \\ \lambda_{XY} & \lambda_{YY} & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{ZZ} \end{bmatrix}$$

Les paramètres à estimer sont

donc:

$$\lambda_{XX}, \lambda_{YY}, \lambda_{XY}$$

$$\lambda_{ZZ}, C_p$$

Modélisation du problème thermique

Résolution du problème direct par Éléments Finis

- Les champs de température $T_i(x,y,z,t)$ sont obtenus en résolvant le système d'équation suivant sur Γ :

$$\rho_i C p_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \nabla \cdot (\Lambda_i \nabla T_i) \text{ dans } \Omega_i$$

$$n \cdot (\Lambda_1 \nabla T_1) = \phi(x, y), \text{ sur } \Gamma_{1,but}$$

$$n \cdot (\Lambda_i \nabla T_i) = \varepsilon \sigma (T_\infty^4 - T_i^4), \text{ sur } \Gamma_{i,lat} \cup \Gamma_{3,top}$$

$$-\lambda_{1,zz} n_{1,z} \frac{\partial T_1}{\partial z} \Big|_{z=e_1} = \frac{T_1(z=e_1) - T_2(z=e_1)}{Rtc}, \text{ sur } \Gamma_{1-2,int}$$

$$-\lambda_{2,zz} n_{2,z} \frac{\partial T_2}{\partial z} \Big|_{z=e_2} = \frac{T_2(z=e_2) - T_3(z=e_2)}{Rtc}, \text{ sur } \Gamma_{2-3,int}$$

- Condition initiale : $T(x, y, z, t = 0) = T_\infty$

- La source de chaleur est définie par :

$$\phi(x, y, z = 0, t) = Q(t) \cdot \chi_{heater}(x, y, z = 0)$$

Avec $Q(t)$ un échelon de flux de chaleur et χ_{heater} défini par :

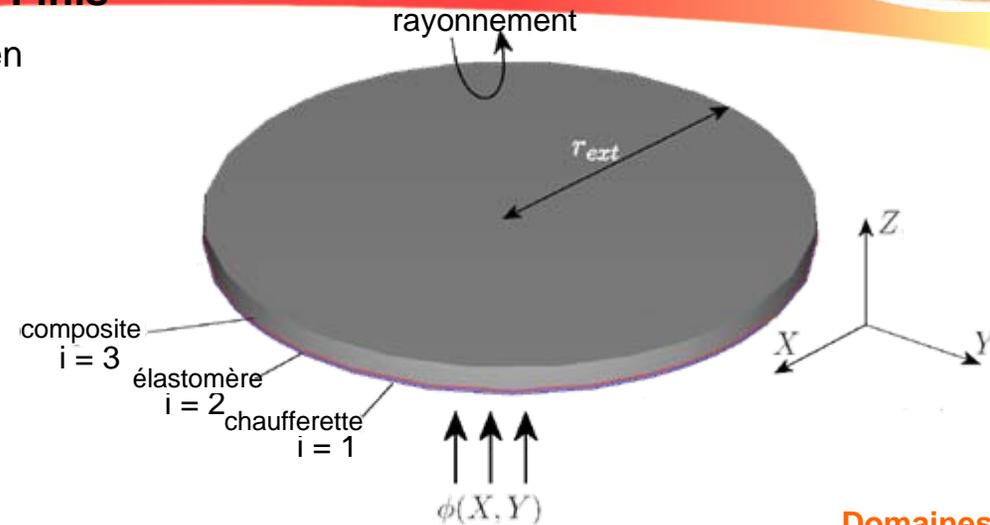
$$\chi_{heater} = 0, \quad r_{int} < r < r_{ext}$$

Configuration A :

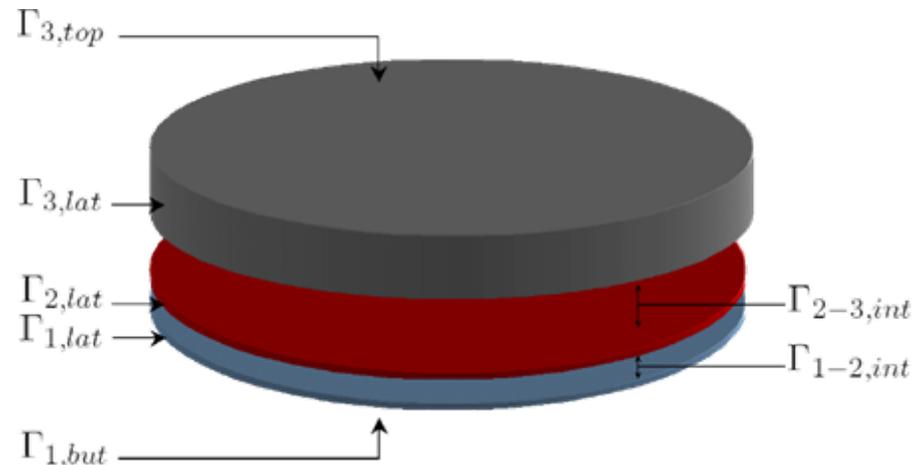
$$1, \quad 0 < r < r_{int}$$

Configuration B :

$$\chi_{heater} = 1, \quad 0 < r < r_{ext}$$



Domaines



9 Interfaces

Calcul des sensibilités



Intérêts :

- Elles jouent un rôle direct dans l'algorithme d'estimation que l'on a choisi
- Elles nous informent de la faisabilité de l'estimation
- Elles peuvent être utilisées en vue d'optimiser le design (ex: Emplacement des capteurs de température de la chaufferette)

Définition :

Le champ de sensibilité X au paramètre β_j dans le sous domaine Ω_i est défini par :

$$X_{ij}(x, y, z, t; \beta) = \frac{\partial T_i(x, y, z, t)}{\partial \beta_j}, j = 1 : m, i = 1 : 3$$

Exemple :

Le champ de sensibilité $X(\lambda_{3XX})$ est défini par le système suivant :

$$\rho_i C p_i \frac{\partial X_i(\lambda_{3XX})}{\partial t} = \nabla \cdot (\Lambda_i \nabla X_i(\lambda_{3XX})) + \delta_{i,3} \frac{\partial^2 T_3}{\partial x^2} \text{ dans } \Omega_i$$

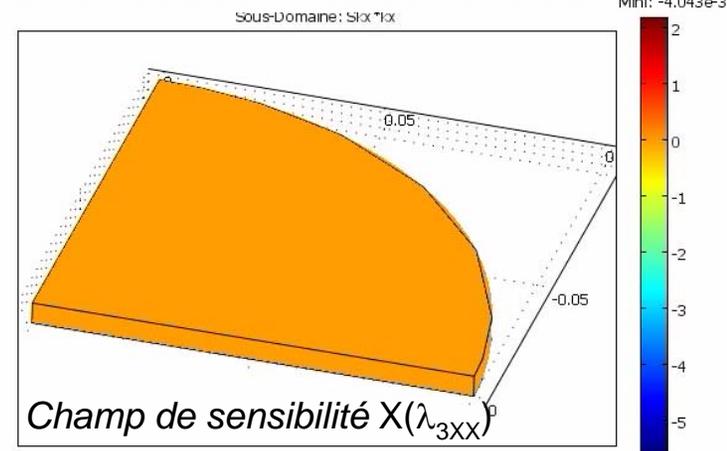
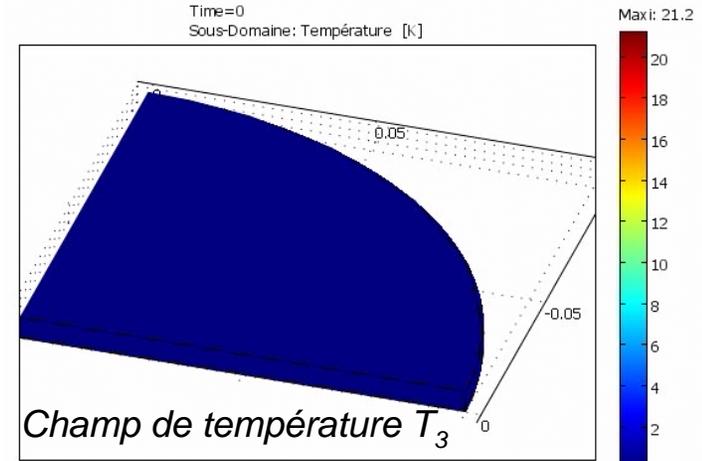
$$n \cdot (\Lambda_i \nabla X_i(\lambda_{3XX})) = 0, \text{ sur } \Gamma_{1, \text{but}}$$

$$n \cdot (\Lambda_i \nabla X_i(\lambda_{3XX})) = \varepsilon \sigma T_i^3 X_i(\lambda_{3XX}) - \delta_{i,3} \frac{\partial T_3}{\partial x}, \text{ sur } \Gamma_{i, \text{lat}} \cup \Gamma_{3, \text{top}}$$

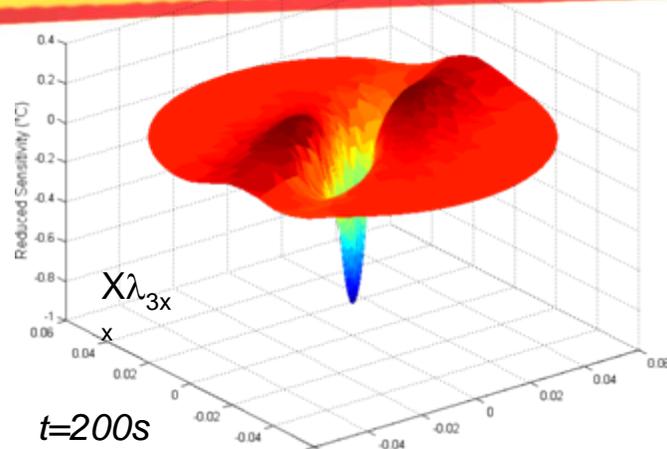
$$-\lambda_{1,zz} n_{1,z} \frac{\partial X_1(\lambda_{3XX})}{\partial z} \Big|_{z=e_1} = \frac{X_1(\lambda_{3XX}, z=e_1) - X_2(\lambda_{3XX}, z=e_1)}{Rtc}, \text{ sur } \Gamma_{1-2, \text{int}}$$

$$-\lambda_{2,zz} n_{2,z} \frac{\partial X_2(\lambda_{3XX})}{\partial z} \Big|_{z=e_2} = \frac{X_2(\lambda_{3XX}, z=e_2) - X_3(\lambda_{3XX}, z=e_2)}{Rtc}, \text{ sur } \Gamma_{2-3, \text{int}}$$

Termes de couplage



Localisation des capteurs de température

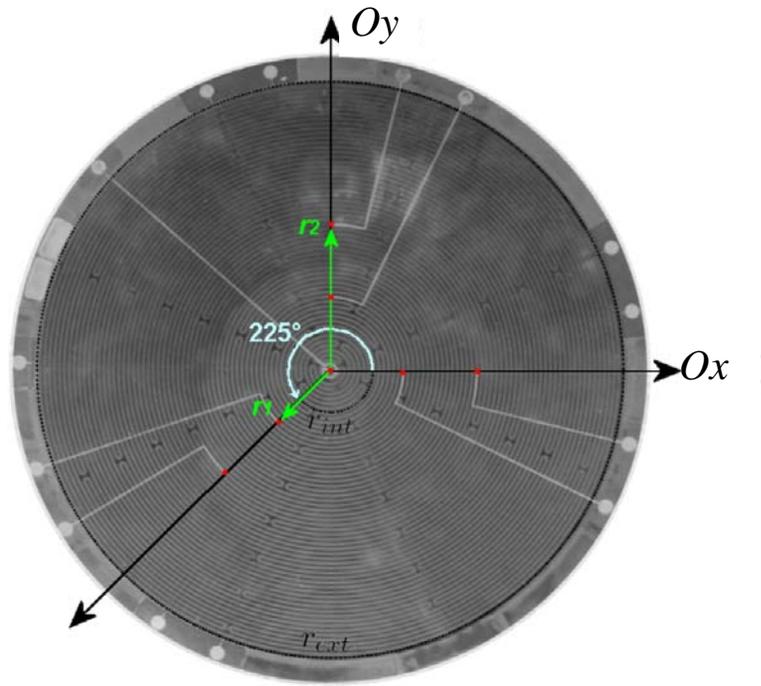


Analyse

- $X\lambda_{3xx}$: Sensibilité maximum au centre: 1 TC au centre
- $X\lambda_{3xx}$: Second pic de sensibilité: 1 autre TC

Placement des thermocouples

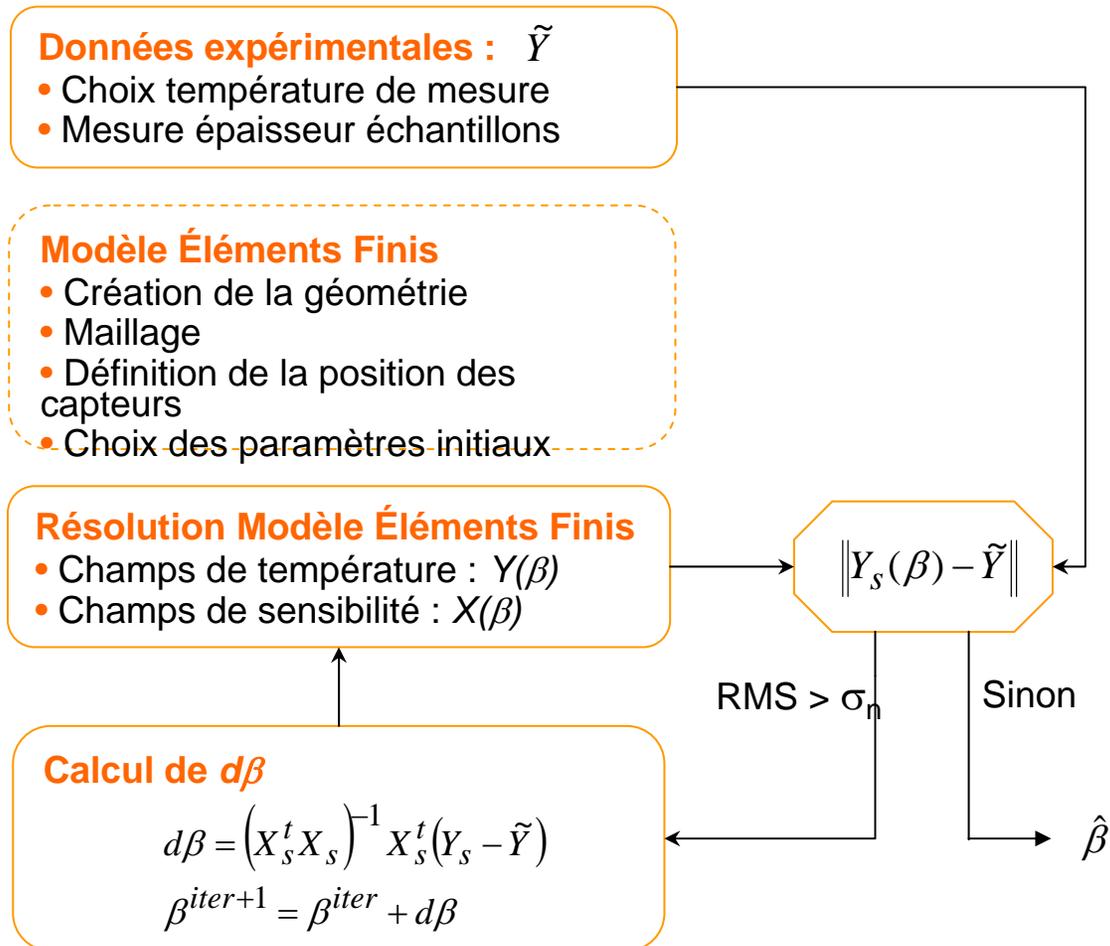
- Pics des sensibilités se décalent vers l'extérieur avec le temps: Placement TC sur 2 rayons r_1 et r_2
- Orientations des TC selon 3 directions: détecter les isothermes elliptiques et remonter aux directions principales
- Nous avons considéré la gamme de conductivités suivante: 0.1 à 10 W/m.K



Sensibilités et algorithme d'identification

Vecteur paramètres à estimer : $\beta = [\lambda_{3XX} \quad \lambda_{3YY} \quad \lambda_{3XY} \quad \lambda_{3ZZ} \quad Cp_3 \quad Rtc]$

Principe de l'algorithme de Gauss Newton



σ_n est mesuré pendant les premiers instants de l'expérience avant chauffage

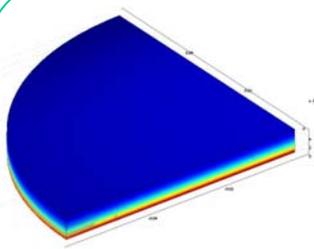
L'indice « s » indique que le paramètre est considéré à la position des thermocouples (sensors)



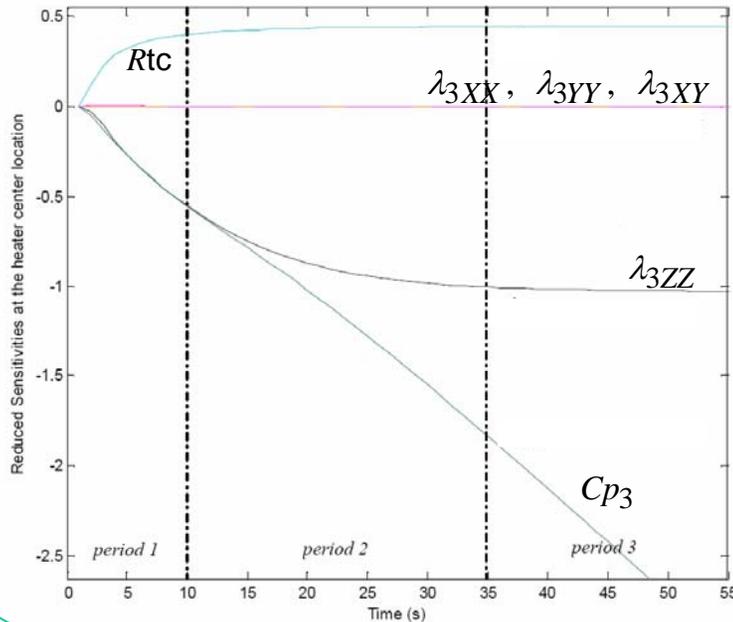
Comparaison des sensibilités réduites aux paramètres

2 configurations de chauffage

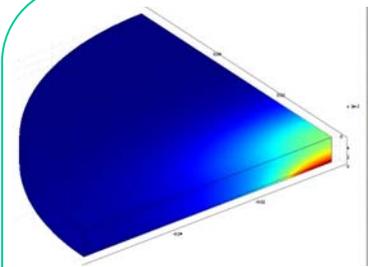
Configuration B: Centrale et périphérique



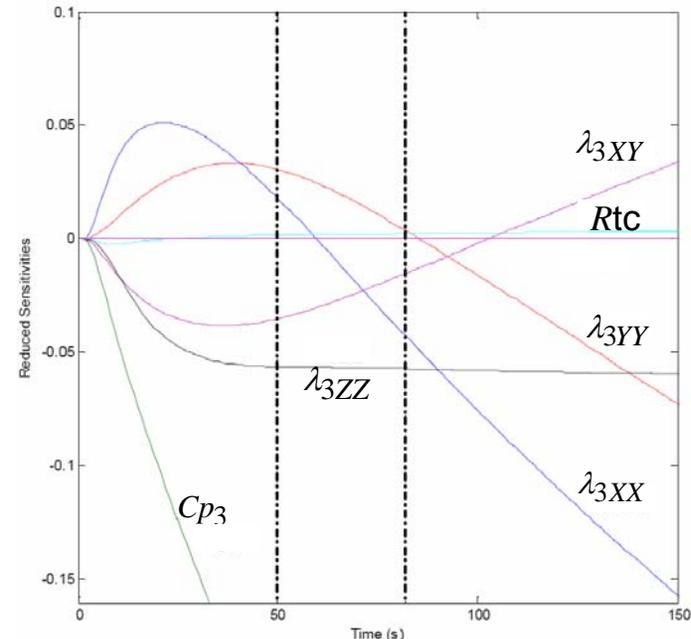
- Aucune sensibilité à λ_{3XX} , λ_{3YY} , et λ_{3XY}
- Estimation possible de λ_{3ZZ} , Cp_3 , et Rtc



Configuration A: Centrale



- Tous les paramètres sont estimables



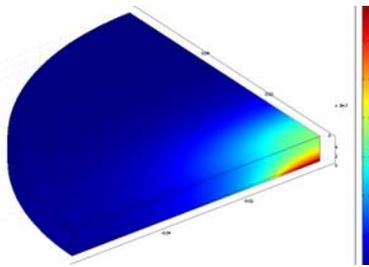
Stratégies d'estimation



La précision a un prix..

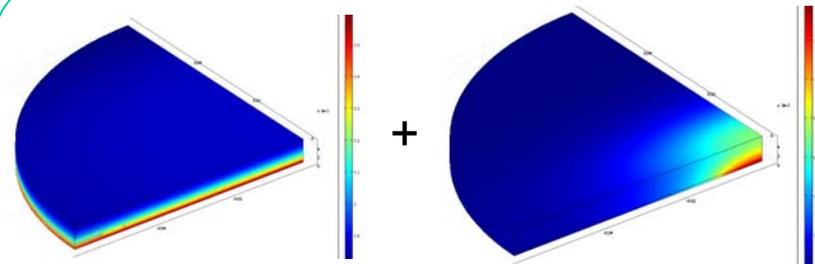
Deux stratégies d'estimation envisageables

Stratégie 1: Estimation simultanée



Configuration A $re(\lambda_{3XX}) = 1,01\%$
 $re(\lambda_{3YY}) = 1,01\%$
 $re(\lambda_{3XY}) = 1,29\%$
 $re(\lambda_{3ZZ}) = 1,53\%$
 $re(Cp_3) = 0,62\%$
 $re(Rtc) = 5,16\%$

Stratégie 2: Estimation en deux étapes

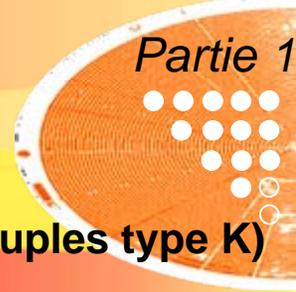


Configuration B $re(\lambda_{3ZZ}) = 0,41\%$
 $re(Cp_3) = 0,06\%$
 $re(Rtc) = 0,33\%$

Puis configuration A $re(\lambda_{3XX}) = 0,13\%$
 $re(\lambda_{3YY}) = 0,48\%$
 $re(\lambda_{3XY}) = 0,70\%$

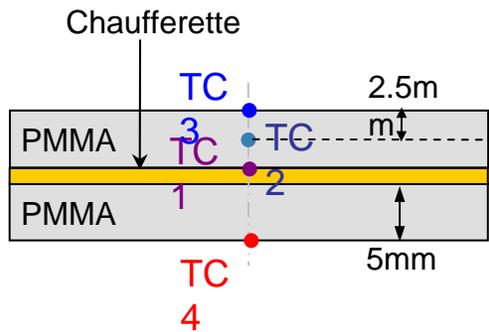
- **Stratégie 1: Très rapide, une seule expérience, donc peu onéreuse.**
- **Stratégie 2: Plus précise mais plus longue et plus coûteuse.**

Validation sur un matériau isotrope dont les propriétés thermiques sont connues

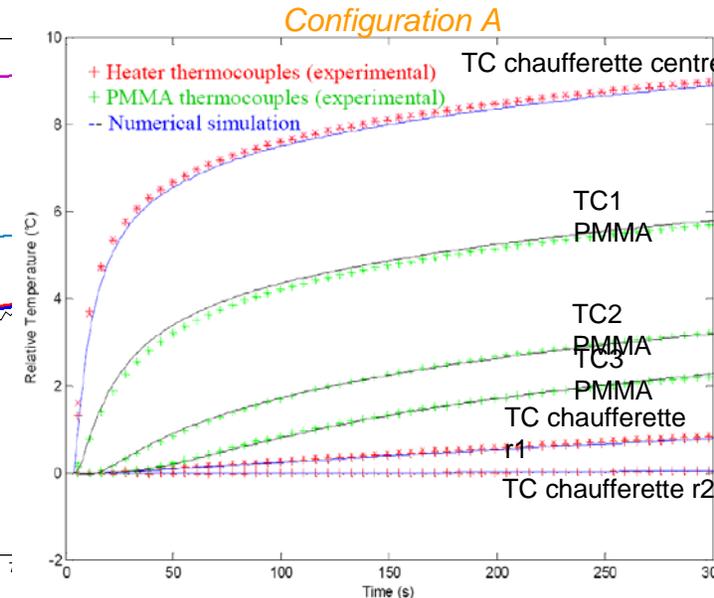
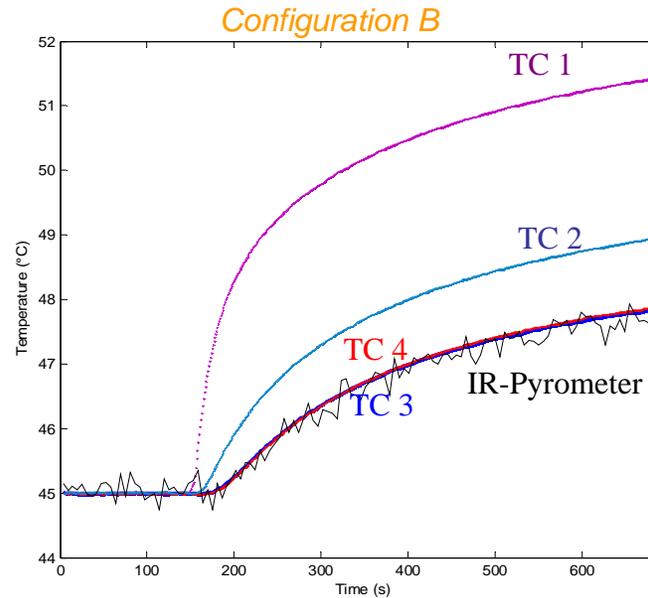


Expériences réalisées sur des échantillons de PMMA instrumentés (Thermocouples type K)

Schéma explicatif



Courbes obtenues



- Le flux est dissipé de manière symétrique
- La méthode est validée pour le PMMA

Résultats d'estimation

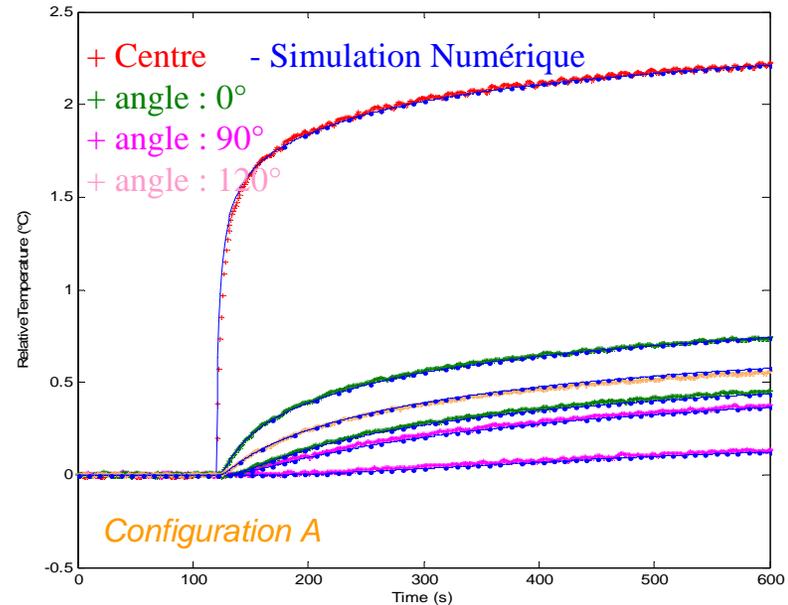
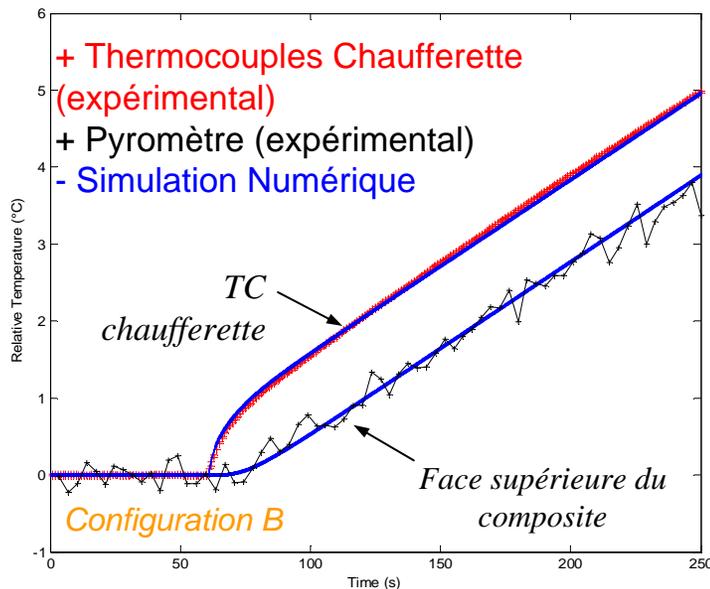
Paramètres	Conf. A 45°C	Conf. B 45°C	PCG/DSC 45°C	Littérature 20°C
λ^{PMMA} (W/m.K)	0.202±1%	0.197±0.5%	0.2	0.197
C_p^{PMMA} (J/kg.K)	1508 ±1%	1491 ±0.5%	1532	1380
R_{tc} (m ² .K.W ⁻¹)	4 10 ⁻⁴ ±3%	3 10 ⁻⁴ ±2%		

Mesures sur un composite unidirectionnel



Expériences réalisées sur l'échantillon ayant servi de référence au Cross Bench de la SFT

Courbes obtenues



Résultats d'estimation

Paramètres	Valeurs	Erreurs relatives	Soit	Paramètres	Valeurs	CCR	CCR	LTN	LTN
λ_{3zz}	0.62 W/m.K	2.23%			45°C	25°C	60°C	40°C	60°C
Cp_3	1050 J/kg.K	4.06%		λ_{3xx} (W/m.K)	5.35	5.2	5.7	4.96	5.26
Rtc	$5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$	8.09%		λ_{3yy} (W/m.K)	0.66	0.69	0.71	-	-
λ_{3XX}	4.59 W/m.K	5.02%		λ_{3zz} (W/m.K)	0.62	-	-	0.68	0.72
λ_{3YY}	1.37 W/m.K	1.09%		Cp_3 (J/Kg.K)	1050	983	1043	992	1071
λ_{3XY}	-1.68 W/m.K	2.07%		θ	23°				

Développement d'une méthode de mesure capable de mesurer le tenseur de conductivité et la chaleur spécifique d'un matériau composite

Résumé

Conception d'un élément chauffant innovant

- Élément chauffant capable de mesurer des températures
- 2 éléments chauffants
- 2 stratégies d'estimation
- Positions des thermocouples optimisées

Modélisation numérique

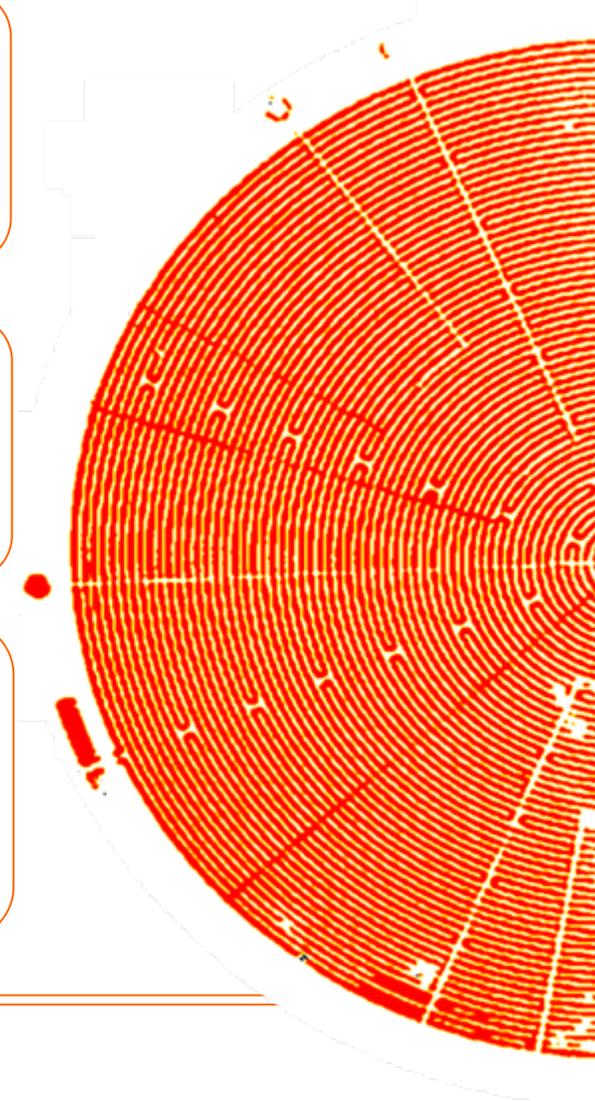
- Développement d'un modèle direct par éléments finis 3D instationnaire
- Estimation des paramètres par méthode inverse

Développement d'un programme global d'estimation intégrant des routines de Comsol

Tests expérimentaux

- Mesure des propriétés de la chaufferette
- Mesure des propriétés des couches élastomères
- Validation sur des échantillons de PMMA
- Détermination des propriétés d'un échantillon composite unidirectionnel

Premiers résultats en accord avec les tests croisés

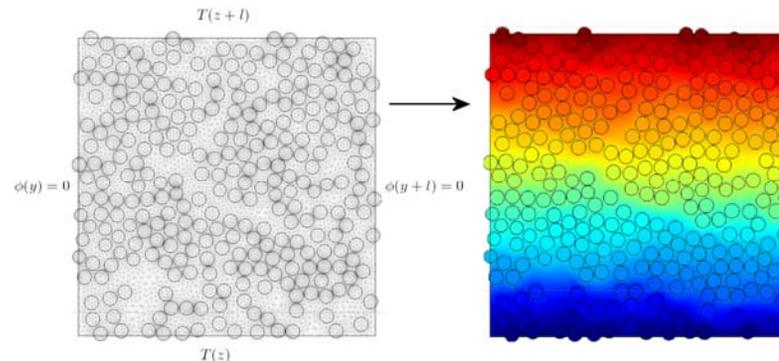


Correlation with microstructure

Predictive models of thermal properties based on the **RVE** of actual composite microstructure are developed

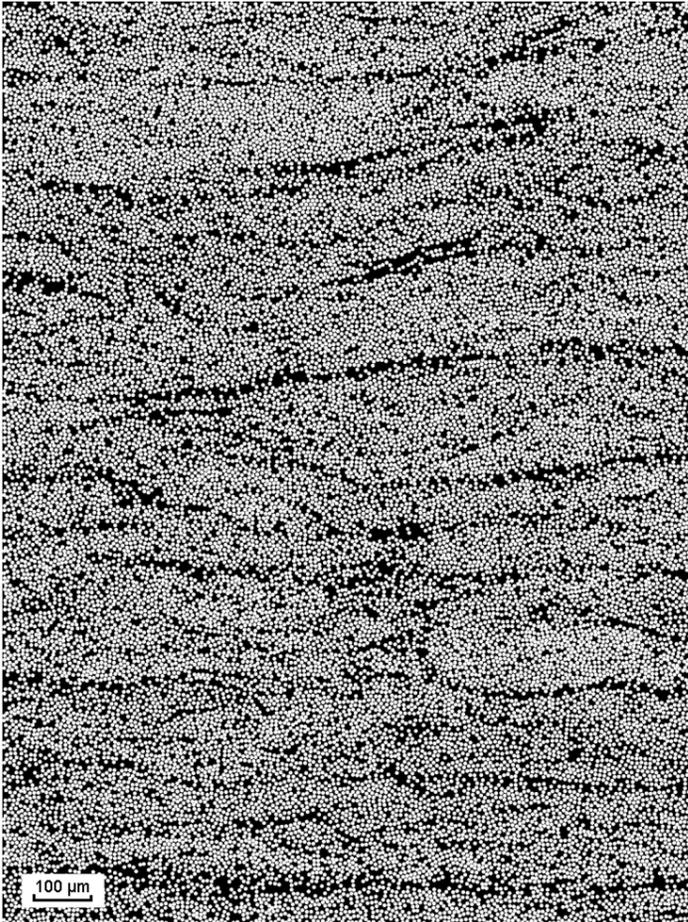
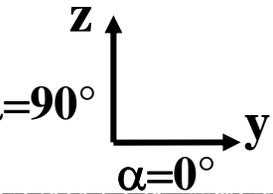
- › A subvolume Ω_s of the whole sample of volume Ω .
- › (a) That is statistically representative of the microstructure geometry of the material.
- › (b) Having a similar behaviour to the whole sample when submitted to similar boundary conditions.
- › Depends on the studied property !!
- › RVE λ depends on many factors: V_f , inclusion arrangement, contrast, ...

Unit Cell method:



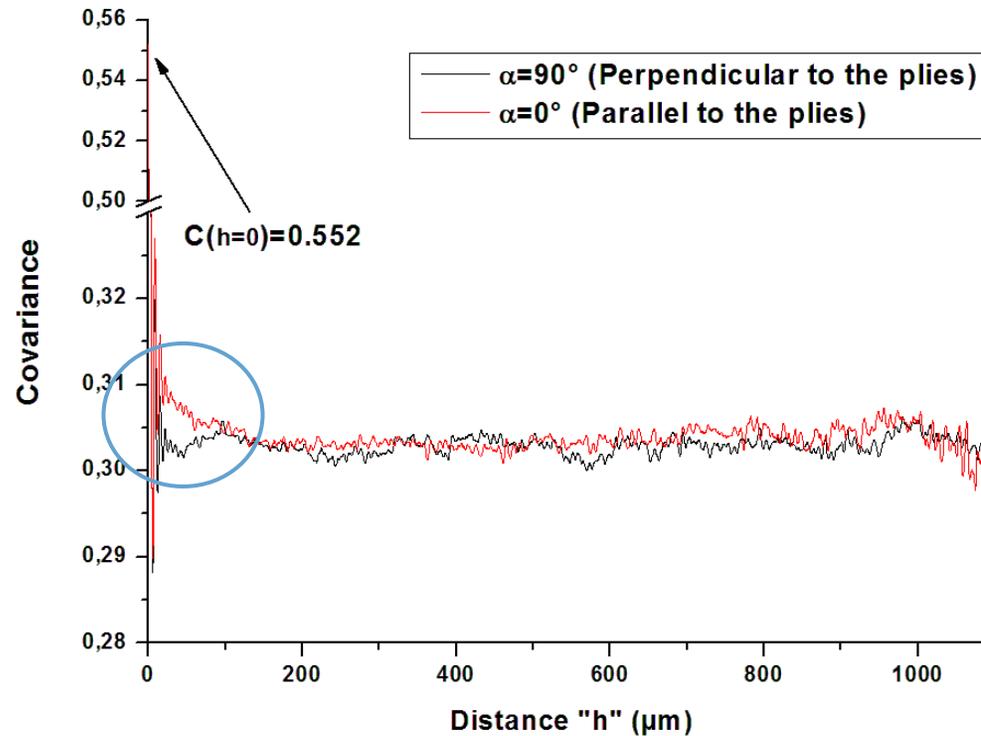
$$\lambda_{zz} = L \times \langle \phi(z) \rangle$$

with $\Delta T = 1K$



Anisotropic character?

Covariance: the probability for the two points x and $x+h$ to be both in the same phase



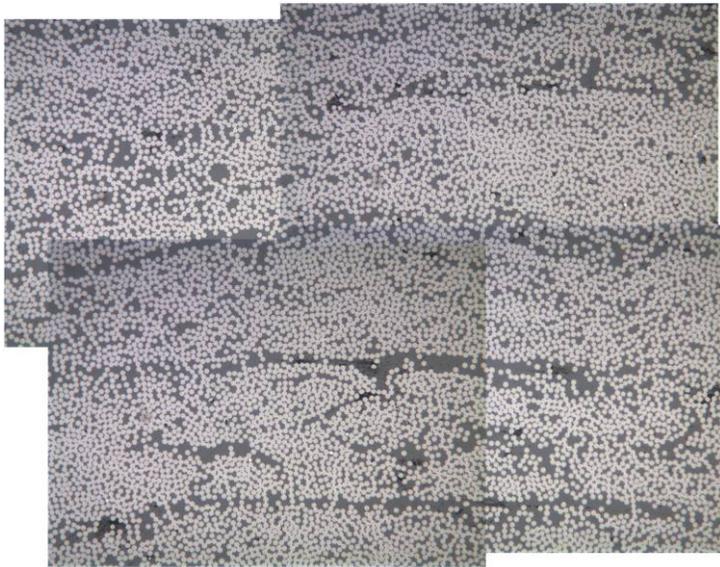
→ Sensitivity of covariance function to analysis direction permits to highlight a **weak anisotropy** of the composite microstructure.

✓ RVE size from spatial descriptors: $L \approx 600 \mu\text{m}$.

Les résultats des modèles sont directement corrélés à la qualité des images

Protocole de polissage d'échantillon

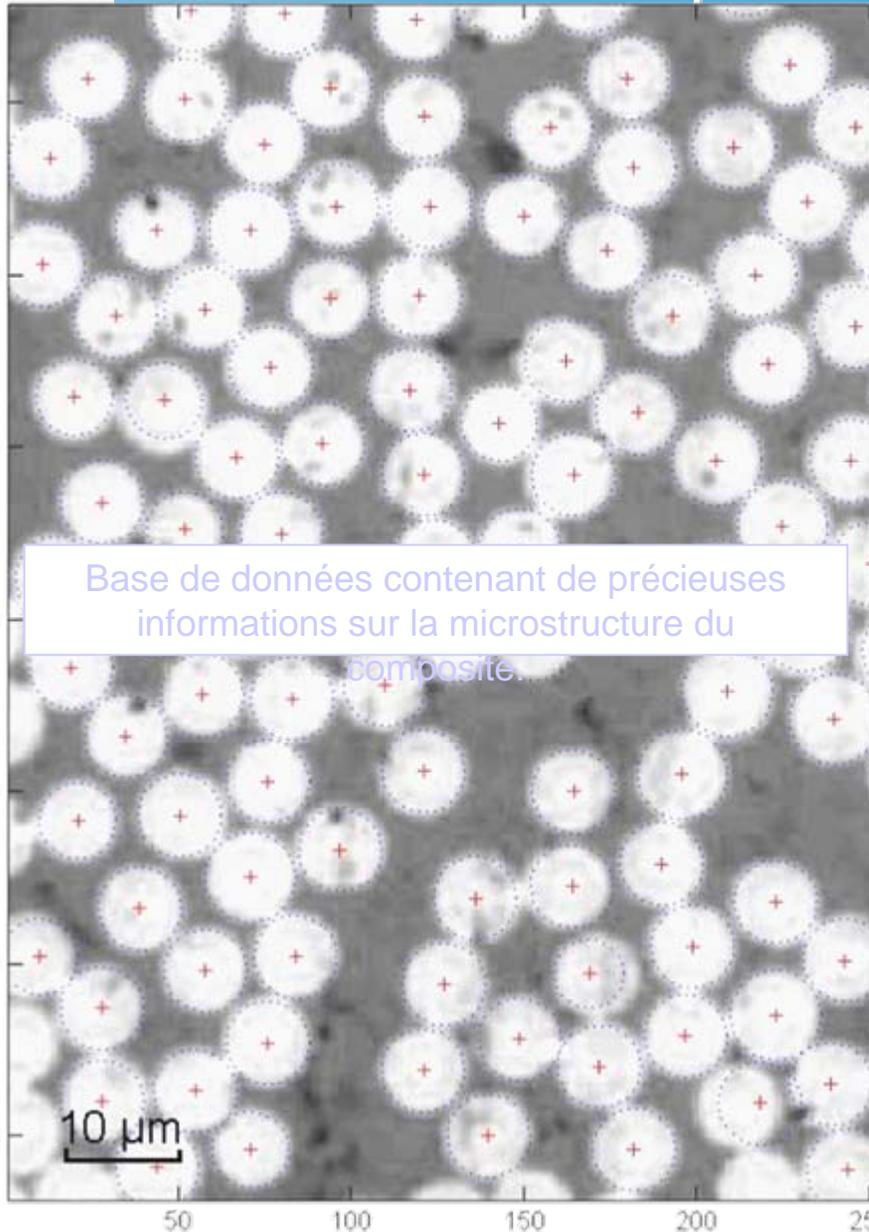
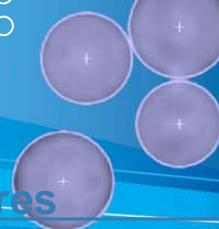
Acquisition d'image par mosaïque: Images de grandes dimensions à résolution importante



Images ayant servi à l'analyse proposée

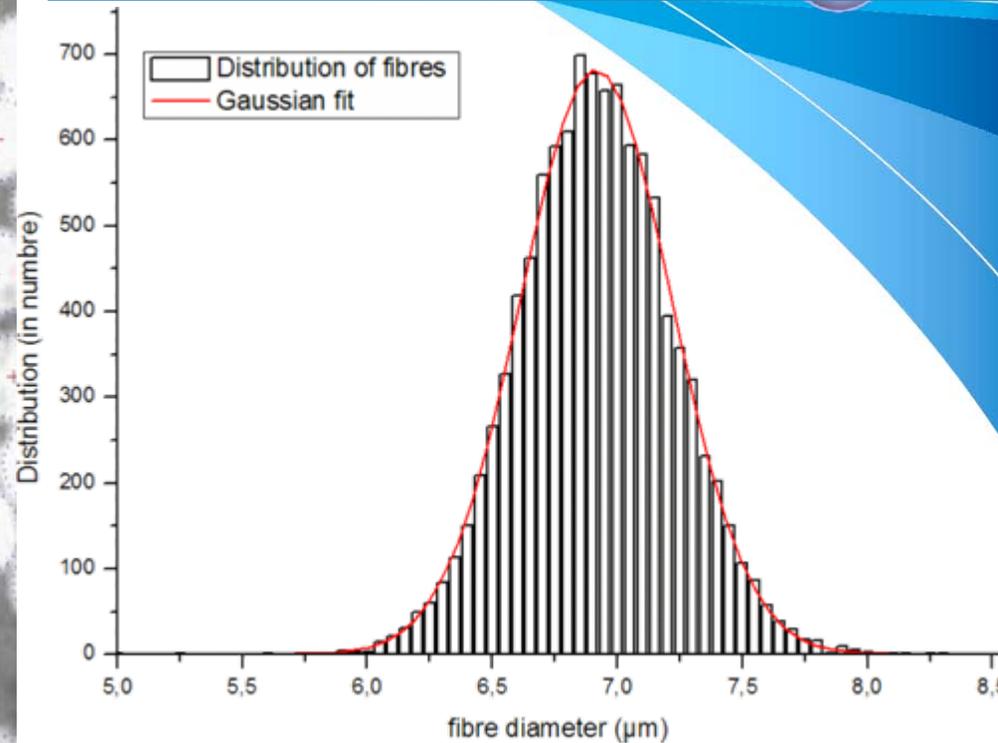
Image	Taille($\mu\text{m} \times \mu\text{m}$)	Nombre de fibres
A	691 x 749	7682
B	969 x 802	11824
<u>C</u>	<u>1567 x 1170</u>	<u>27963</u>
D	1081 x 691	11331
E	1180 x 790	8401
F	1129 x 785	13843

Comment extraire
des informations
morphologiques
de ces images en
niveau de gris?



Base de données contenant de précieuses informations sur la microstructure du composite.

Distribution des diamètres



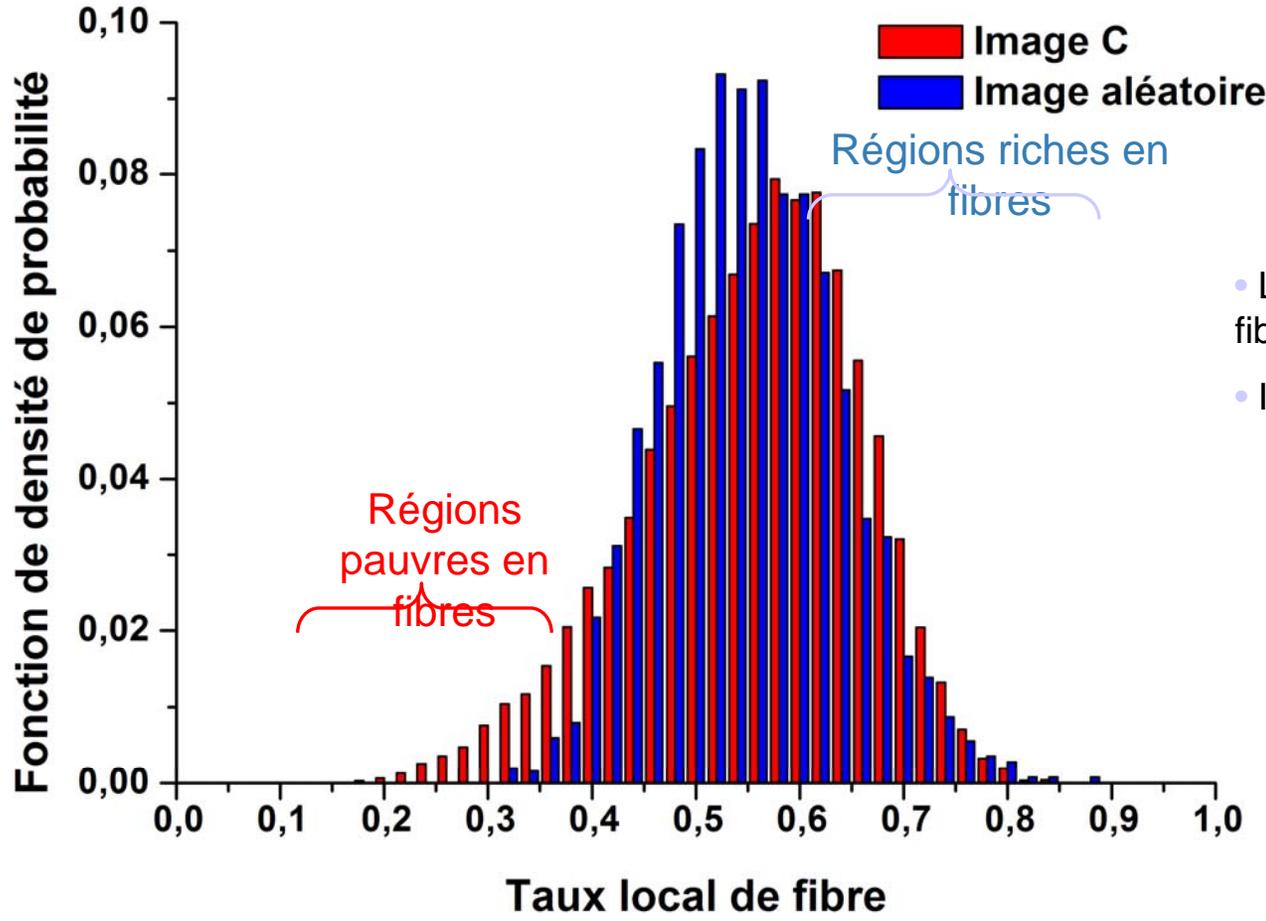
Distribution des fibres

- Distribution de fibres non régulière et non périodique.
- Fibres dispersées de manière aléatoire dans la résine ? (Trias.05, Zeman.01) → utilisation de modèles adaptés

Comparaison avec une structure composite ayant une distribution de fibres.

Comparaison de la microstructure du composite à une distribution aléatoire de fibres

Comparaison des distributions de taux local de fibres



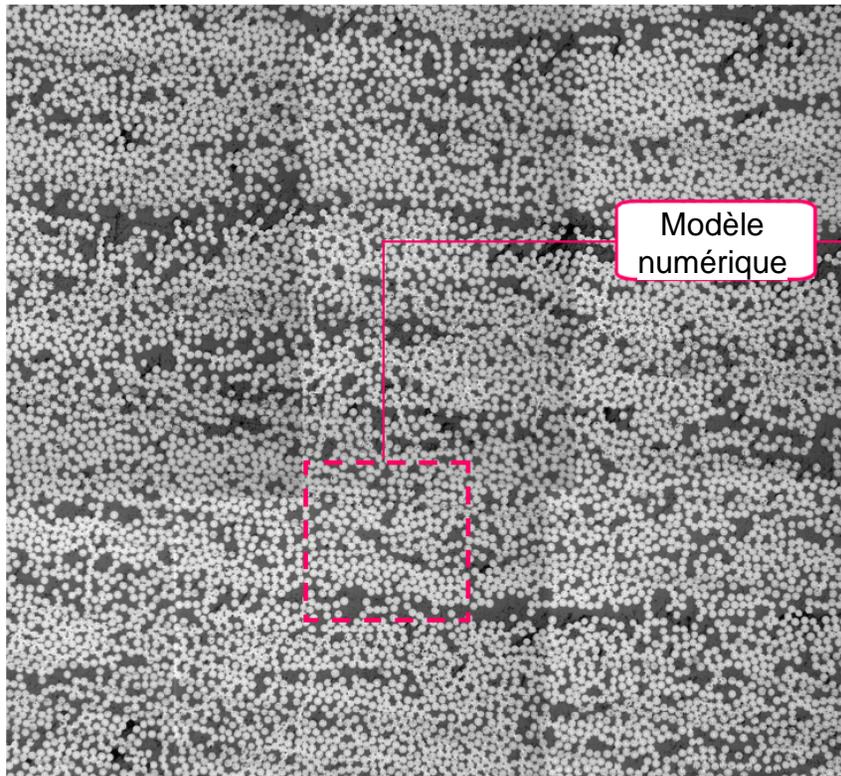
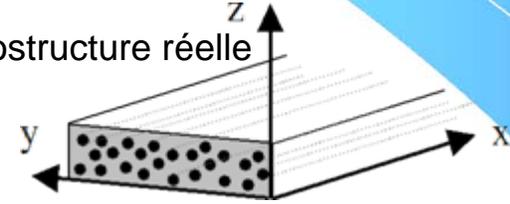
- La distribution des taux locaux de fibre sont clairement différentes
- Impact des inter-plis

Impossible de supposer la distribution de fibres du composite étudié comme aléatoire

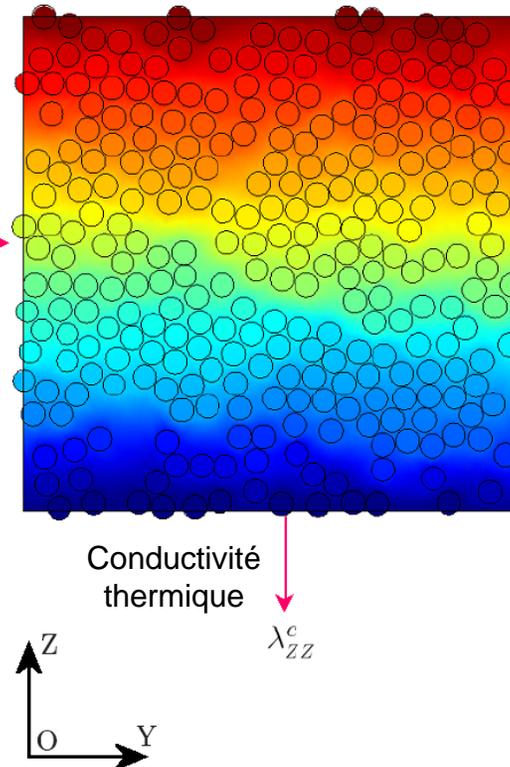
Recherche du tenseur de conductivité thermique

$$\Lambda_{Oxyz} = \begin{bmatrix} \lambda_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{zz} \end{bmatrix}$$

- λ_{xx} : Modèle parallèle fonctionne assez bien
- λ_{yy} et λ_{zz} : Modèles basés sur la microstructure réelle



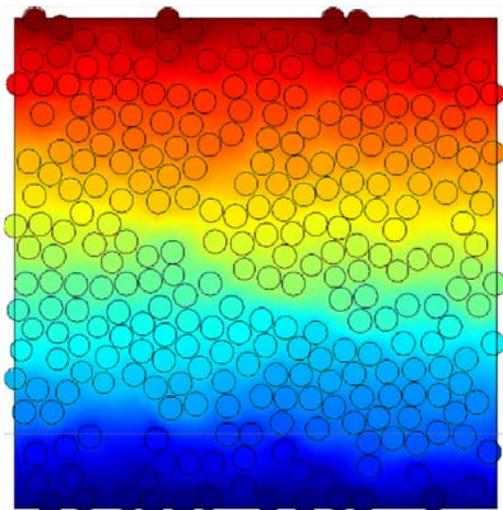
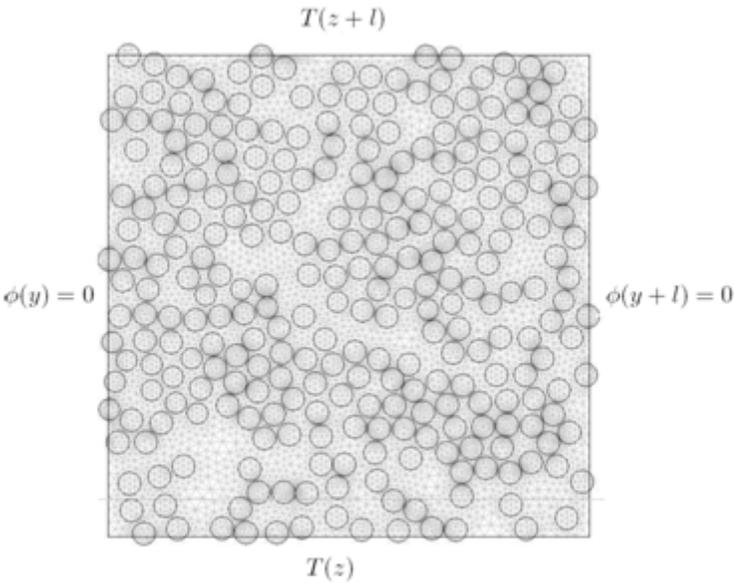
Modèle numérique



3
modèles ont été
développés

Modèle « Unit Cell »

Modèle le plus classique



Images de la microstructure du composite

Détection des centres et rayons des fibres

BASE DE DONNEES

Création de la Géométrie
(Consommateur en temps)

Détection des frontières et domaines
(Complicé)

Applications des conditions limites
Application des propriétés des domaines

Maillage
(Consommateur en temps)

Calcul des conductivités thermiques
apparentes du composite
(Consommateur en temps)

Modèle le plus efficace en terme de temps de calcul

Images de la microstructure du composite

Détection des centres et rayons des fibres

BASE DE DONNEES

Création des cellules de Voronoï
puis création de la géométrie
(Consommateur en temps)

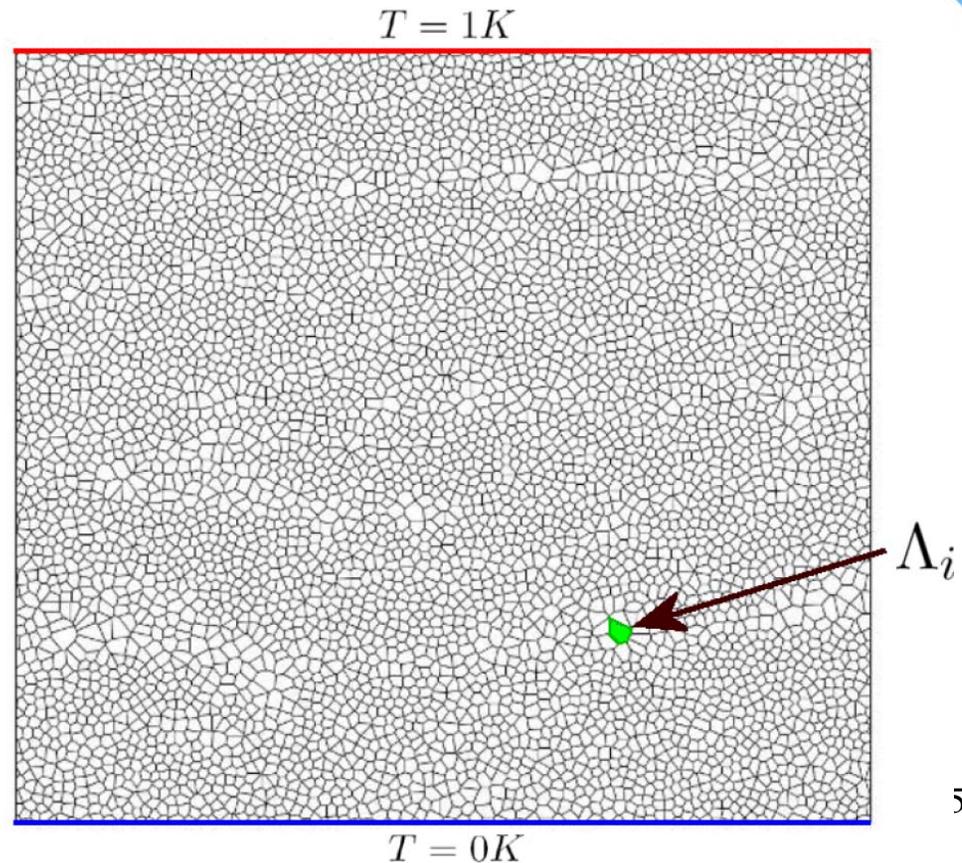
Détection des frontières et domaines

Applications des conditions limites
Application des propriétés des domaines

Λ_j : Besoin d'un modèle

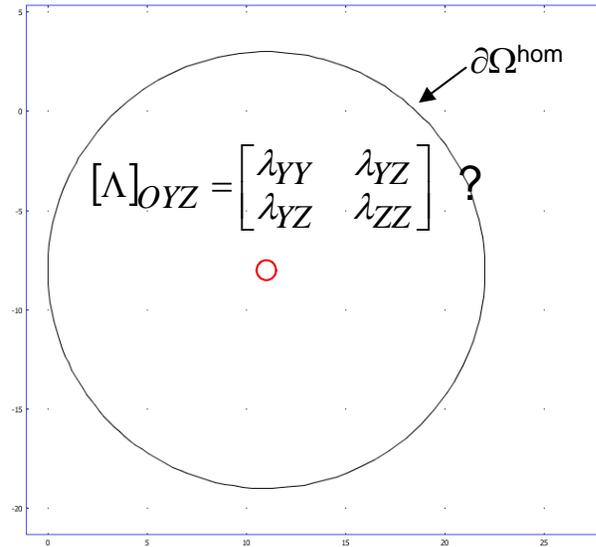
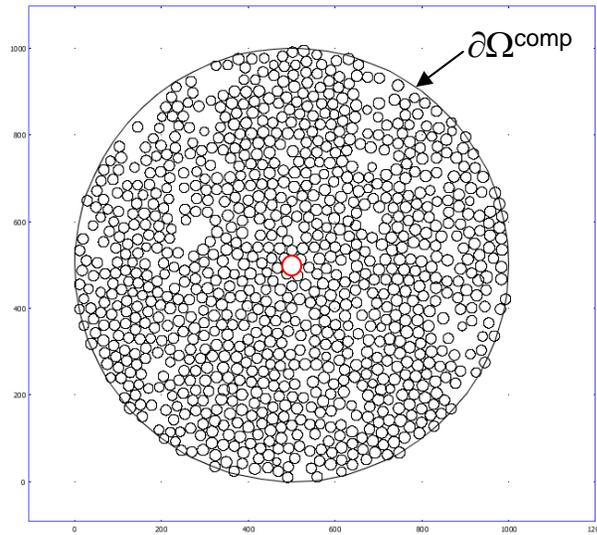
Maillage

Calcul des conductivités thermiques
apparentes du composite

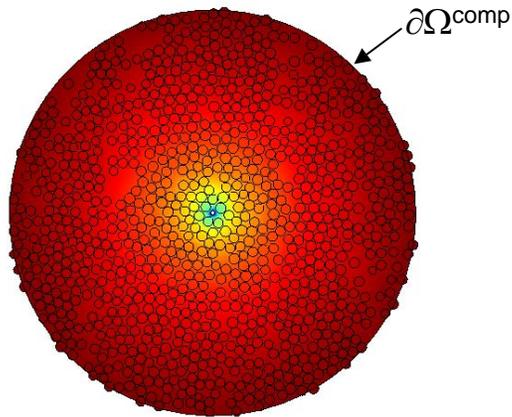


Modèle « Radial »

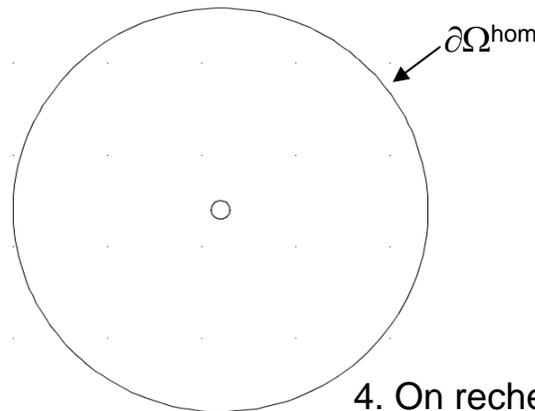
Modèle permettant de calculer les directions principales



1. On impose un ΔT entre les frontières 3. On impose le flux $\phi(x,y)$ sur $\partial\Omega^{hom}$



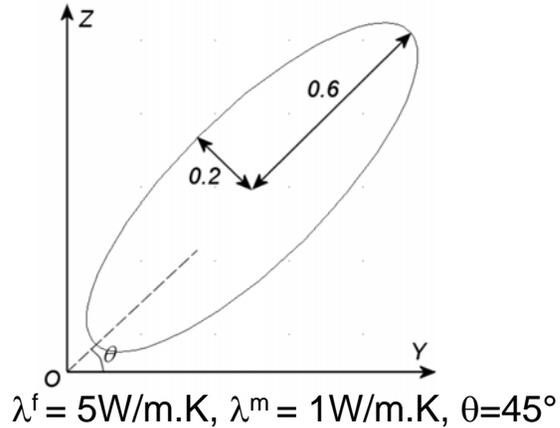
2. On mesure le flux $\phi(x,y)$ sur $\partial\Omega^{comp}$



4. On recherche par méthode inverse Λ_{Oyz} pour minimiser l'écart de température calculé entre $\partial\Omega^{comp}$ et $\partial\Omega^{hom}$

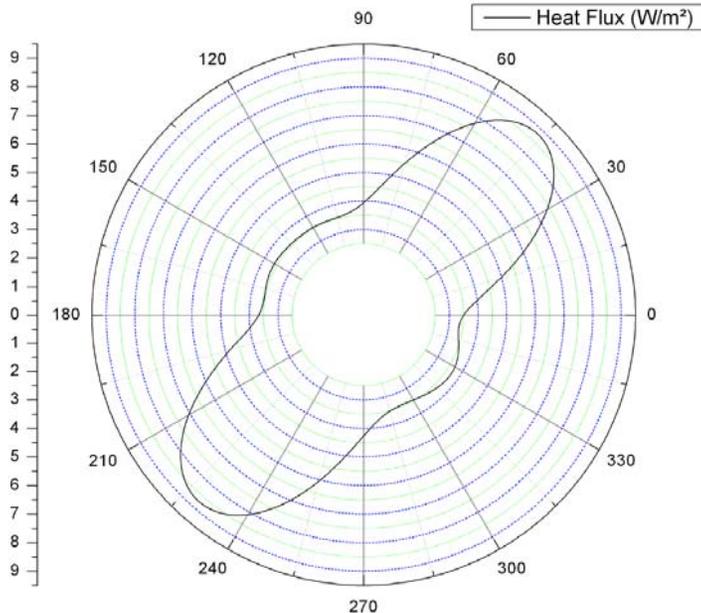
Validation des modèles

Validation sur un cas test : cellule périodique contenant une fibre elliptique



Résultats

Paramètres	Unit Cell	Voronoi	Radial	Théorique
λ_{YY} (W/m.K)	1.75	x	1.704	1.768
λ_{ZZ} (W/m.K)	1.75	x	1.704	1.768
λ_{YZ} (W/m.K)	x	x	0.276	0.27
λ_{zz} (W/m.K)	x	1.92	1.979	2.041
λ_{yy} (W/m.K)	x	1.52	1.428	1.495
θ	x	x	135°	135°



Modèles validés :

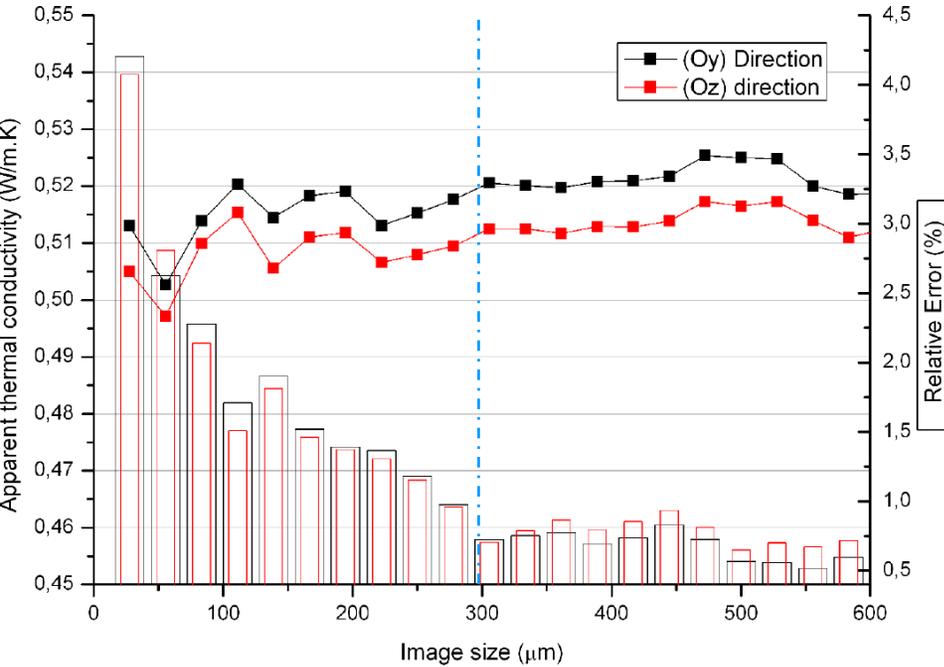
- Le modèle radial détecte correctement les directions principales.
- Le modèle de Voronoï sous estime légèrement les conductivités effectives.

Recherche du VER lié à la conductivité thermique

Démarche

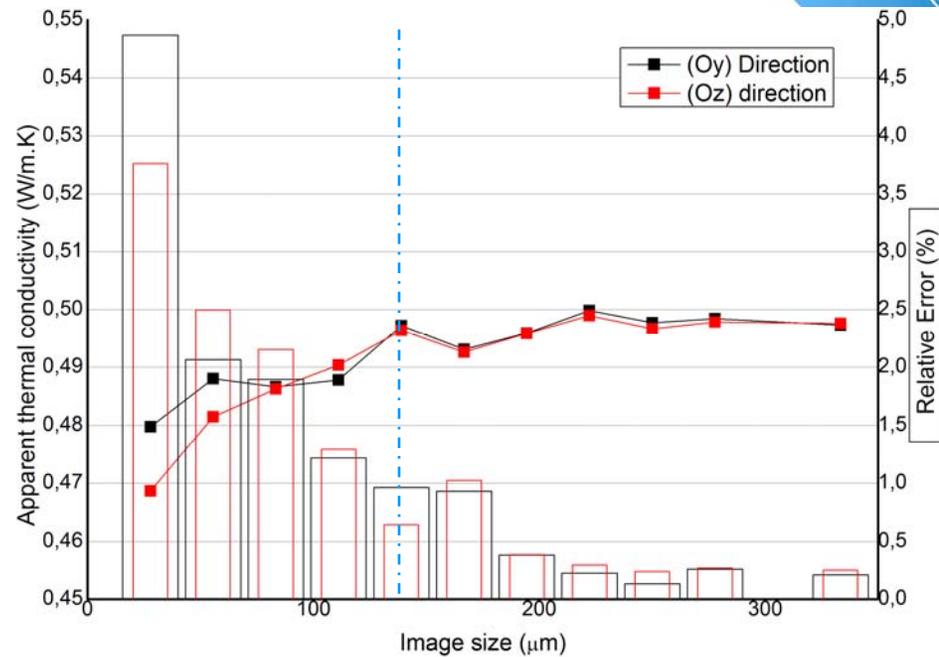
- Étude de convergence de λ_{yy} et λ_{zz} en fonction de la taille de la fenêtre d'étude
- 60 fenêtres localisées de manière aléatoire ont été étudiées par taille
- Conductivité des constituants - fibre: $\lambda_f=1.19$ W/m.K et matrice: $\lambda_m=0.22$ W/m.K

Résultat composite SFT



- VER de 300μm x 300μm
- Anisotropie thermique clairement révélée

Résultat arrangement aléatoire de fibres



- RVE de 150μm x 150μm
- Matériau isotrope dans le plan

Confirmation of thermal anisotropy observed from experimental results

Results

- Computed from 30 experiments for each window size
- $\lambda^f = 1.19 \text{ W/mK}$, $\lambda^m = 0.22 \text{ W/mK}$

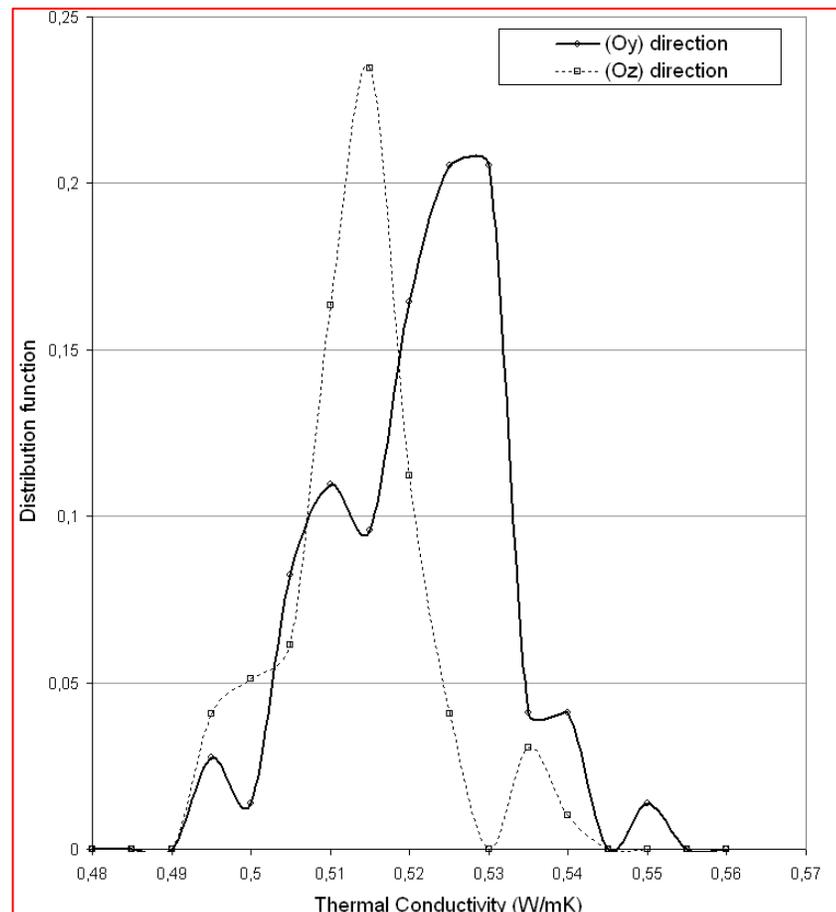
It is possible to determine a **RVE size** as a function of the number of realizations and a given relative error.

$L \approx 300 \mu\text{m}$

- A convergence study has to be related to statistical considerations \rightarrow **Distribution of effective property**

Anisotropy

- Weak anisotropy ($\approx 2\%$)
- Systematic
- Consequence of inter-plyes



Conclusions

1) **Measurement method** to determine thermal conductivities and specific heat of composite sample **without its instrumentation**, coupled with numerical analysis using an inverse method

A. Design of the measurement technique

- Heater design : lay-up
- Dissipation of a known heat flux according different strategies

B. Numerical resolution

- Development of the F.E direct and sensitivities model
- Development of Inverse Method

C. First tests

- Test on PMMA → validation of the method
- Test on known UD composite → good agreement with other results

2) Thermal conductivities can be predicted from **actual composite microstructure**.

- ✓ A weak anisotropy is highlighted
- ✓ RVEs are determined from thermal and morphological properties ($L \approx 300$ and $600\mu\text{m}$, respectively)
- ✓ Thermal conductivities distribution.