

République Algérienne Démocratique et Populaire

*Ministère de L'Enseignement Supérieur et de la Recherche
Scientifique*



*Université de Jijel
Faculté des Sciences et de la Technologie
Département d'Electronique*

*Projet de fin d'études pour l'obtention du Diplôme de
Master II en Electronique
Option: Micro électronique*

*Estimation quantitative de la résistivité
électrique
d'un matériau composite*

Présenté par:

*Kehila ilhem
Kehila réda*

Proposé par:

Dr. MEZDOUR, DOUNIA ZED

Promotion : Juin 2014.



Remerciements

Nous voudrais remercier tout d'abord, Dieu, d'être notre meilleur confident et pour me permettre de réaliser nos rêves.

La rédaction de ce mémoire est l'occasion pour nous de faire un bilan des deux années passées depuis l'obtention de la licence. Ces années ont été riches de rencontres et nous mesurons aujourd'hui la chance que nous avons d'étudier avec des personnes qui m'ont beaucoup appris tout en partageant avec eux de très bons moments.

Nous tenons vivement à remercier notre encadreuse M^{lle}: MEZDOUR DOUNIA ZED, nous tenons à lui exprimer notre profonde gratitude pour l'aide nécessaire ainsi que pour les conseils bénéfiques en vue du bon déroulement du travail durant la réalisation de ce projet.

Nous remercions l'ensemble des membres du jury qui nous ont fait l'honneur d'accepter de lire et de juger ce mémoire.

Nos remerciements sont adressés également au chef du département d'électronique Mr : R. REMMOUCHE.

Nous ne saurons terminer sans remercier l'ensemble des collègues et amis qui nous ont aidé et supporté durant ces dernières années. Un grand merci à vous tous.

À mes proches d'ici et d'ailleurs.

Dédicaces

A mon exemple éternel, mon soutien moral et source de joie et de bonheur, celui qui s'est toujours sacrifié pour me voir réussir, que dieu lui procure bonne santé et longue vie, à toi mon père.

A la lumière de mes jours, la source de mes efforts, la flamme de mon cœur, ma vie et mon bonheur ; que dieu te garde dans son vaste paradis maman que j'adore.

Aux personnes dont j'ai bien aimé la présence dans ce jour, à tous mes frères et mes sœurs, ainsi qu'à leurs époux, à mes nièces, et mes neveux, je dédie ce travail dont le grand plaisir mérité revient en premier lieu pour leurs conseils, aides, et encouragements.

Aux personnes qui m'ont toujours aidé et encouragé, qui étaient toujours à mes côtés, et qui m'ont accompagné durant mon chemin d'études supérieures, mes aimables amis, collègues d'étude,

Je dédie ce modeste travail.....

Réda

Dédicaces

*A celle qui a su me consolider durant les moments les plus
difficiles de ma vie*

..Ma mère,

*A ma source de patience, je lui souhaite bonne santé et
belle vie*



..Mon père,

A mes sœurs : Khalida, Rima, Naima, Nawal

A mes frères : Mounir, Mohamed, Fares

A toutes mes amies,

*A tous ceux qui, de près ou de loin n'ont cessé de
m'apporter leur soutien durant mes études,*

ilhem

INTRODUCTION GENERALE	1
------------------------------------	---

Chapitre I

Introduction aux matériaux composites

I. 1. Introduction	3
I. 2. Définition d'un matériau composite	3
I. 2. 1. La matrice	4
I. 2. 2. Charge et additifs	5
I. 2. 3. Les renforts	6
I. 3. Quelques procédés de fabrication des structures composites	7
I. 3. 1. Moulage au contact	7
I. 3. 2. Moulage par projection	7
I. 3. 3. Moulage sous vide ou « au sac »	8
I. 3. 4. Enroulement filamentaire	9
I. 3. 5. Moulage par injection basse pression de résine – RTM	9
I. 3. 6. Moulage par compression de mat pré imprégné – SMC	10
I. 4. Propriétés des matériaux composites	11
I. 4. 1. Propriétés mécaniques	11
I. 4. 2. Propriétés électriques	11
I. 5. Modélisation des matériaux composites	11
I. 5. 1. Les théories du milieu effectif	11
I. 5. 2. Théorie de la percolation	14
I. 5. 3. Théorie du milieu effectif généralisée (GEM)	14
I. 6. Applications des composites conducteurs	16
I. 7. Conclusion	17

Chapitre II

Simulation de la percolation dans un matériau composite

II. 1. Introduction	18
II. 2. La percolation	18
II. 2. 1. Définition de la percolation.....	19
II. 2. 2. Types de percolations	19
II. 2. 3. Seuil de percolation.....	21
II. 2. 4. Probabilité de percolation	23
II. 3. Effet de taille finie	24
II. 4. Frontières du système	25
II. 5. Longueur de corrélation et lois d'échelle	26
II. 6. Méthodes d'estimation du seuil de percolation.....	28
II. 6. 1. Détermination numérique	28
II. 6. 2. Méthode des séries	28
II. 6. 3 Méthode de renormalisation	28
II. 7. Conclusion	29

Chapitre III

Résultats et discussion

III. 1. Introduction	30
III. 2. Hypothèses de départ.....	30
III. 3. calcul de la résistivité effective	30
III. 4. organigramme.....	32
III. 5. Résultats	33
III. 5. 1. phénomène de percolation	33
III. 5. 2. Effet de la taille de l'échantillon	35
III. 5. 3. Effet de l'épaisseur de l'échantillon.....	36

III. 5. 4 -Effet du type de la matrice	37
III. 5. 5 Effet du type des inclusions.....	39
III. 6. Conclusion.....	40
CONCLUSION GENERALE.....	41

Chapitre I :

Figure I. 1: Représentation d'un matériau composite.....4

Figure I. 2: Les principales familles de matrices.....5

Figure I. 3: Les principaux matériaux de renfort.....6

Figure I. 4: Procédé de moulage au contact.....7

Figure I. 5: Procédé de moulage par projection.....8

Figure I. 6: Procédé de moulage sous vide.....8

Figure I. 7: Procédé d'enroulement filamentaire.....9

Figure I. 8: Procédé de moulage par injection.....10

Figure I. 9: Procédé de moulage par compression.....10

Chapitre II :

Figure II. 1 : Percolation de liens.....19

Figure II. 2: Percolation de sites.....20

Figure II. 3: Percolation mixte.....21

Figure II. 4 : Apparition d'une connexion du système d'un bout à l'autre à partir d'une certaine proportion [26].....22

Figure II. 5 : Variation de la probabilité de percolation.....24

Figure II. 6 : Probabilité de conduction et taille du réseau.....25

Chapitre III :

Figure III. 1: Organigramme de simulatio.....32

Figure III. 2: Evolution de la résisivité effective ρ d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique p des inclusions conductrices ($\rho_{Ag} = 15.10^{-9} \Omega.m$, $\rho_{PVC} = 10^{16} \Omega.m$) 33

Figure III. 3: Evolution de la conductivite électrique σ en fonction de la fraction volumique p des inclusion conductrices.....34

Figure III. 4: Evolution de la résistivité effective ρ d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique p des incusions d'Ag pour différentes tailles de l'échantillon allant de 10 jusqu'à 50 mm (matrice PVC).....35

Figure III. 5: Evolution de la résistivité effective d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique P des incusions pour différentes épaisseurs l' de l'échantillon variant de 10 a 50 mm, l'échantillon ayant une taille $n=50$ mm, $V=N^3$ 36

Figure III. 6: Evolution du seuil de percolation p_c d'un échantillon composite en fonction de l'épaisseur l' échantillon allant de 10 jusqu' à 50 mm (matrice PVC).....37

Figure III. 7: Evolution de la résisivité effective ρ d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique p des incusions conductrices d'Ag pour différents types de matrice($n=10$, $l'=10$).38

Figure III. 8: Evolution de la résisivité effective ρ d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique p des incusions conductrices de type différent ($n=10$, $l'=10$, matrice PVC).....39

Tableau II.1 : Valeurs de p_c pour différents réseaux à 2 et 3 dimensions (* valeurs exactes).....23

Tableau II.2 : Quelques exposants critiques au voisinage du seuil de percolation.....28

Liste des symboles

$\sigma_m(V)$: Conductivité du milieu composite

σ_h : Conductivité de la phase de plus forte conductivité

P : fraction volumique de la phase de plus faible conductivité

l, l_f : Coefficients de dépolarisation

m_f : coefficient qui peut être calculé dans le cas où la phase de plus faible conductivité est parfaitement dispersée

σ_i : conductivité électrique de l'inclusion

P^b : probabilité d'activité des liens

P^s : probabilité d'activité des sites

P_c : seuil de percolation

$P(p)$: probabilité de percolation

v' : exposant critique

t : exposant critique morphologique

n : taille de l'échantillon

γ : exposant critique

p : pourcentage de liens ou de sites actifs

$G(p)$: nombre total d'amas

d : dimension du système

L : diamètre de l'amas

$P_\infty(P)$: probabilité d'appartenir à l'amas infini

ξ : logueur de corrilation

$S(P)$: La taille moyenne des amas finis

ρ : Résistivité de la phase conductrice

l' : epaisseur de l'echntillon

s : section de l'amas

R : Resistance de l'amas

n_{br} : nombre d'amas

Liste des symboles

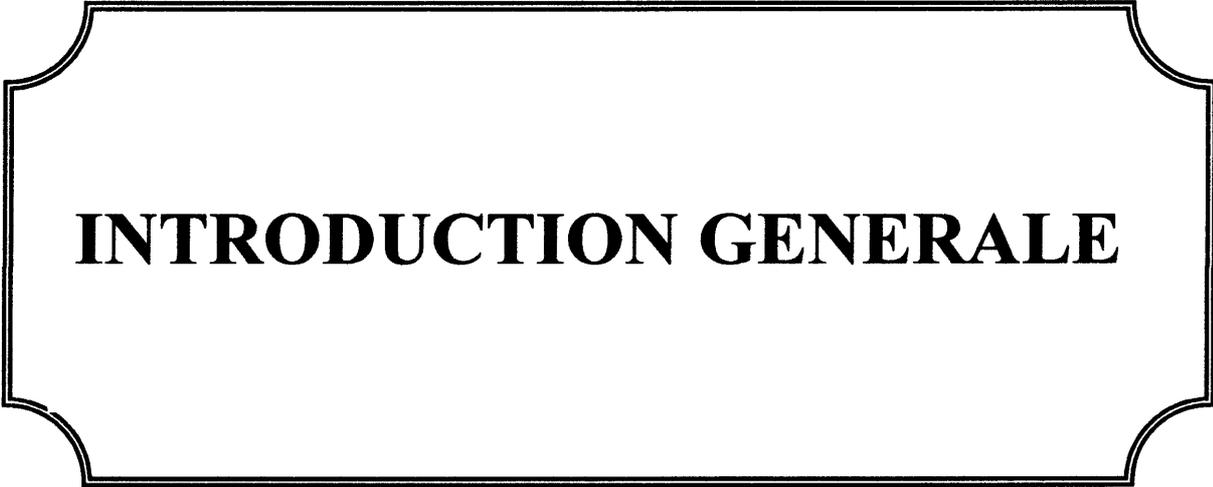
A : surface de l'électrode

R_{eq} : résistance équivalente des chemins conducteurs

R_{mat} : résistance de la matrice vide de toute l'inclusion

R_c : résistance effective du composite

N : nombre totale d'éléments



INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Les matériaux composites conducteurs possèdent de nombreuses applications dans le domaine de l'électronique ou des transports. Ces matériaux se caractérisent par une conductivité électrique proche de celle des métaux, tout en ayant une masse volumique plus faible, et des propriétés de transport de chaleur améliorées par rapport à celles des matières plastiques. Les charges classiquement utilisées sont constituées de fibres ou de poudres métalliques de formes variées (billes, agrégats, etc.) et de dimensions micrométriques. Ces composites ne deviennent conducteurs que pour des concentrations en charges supérieures à une concentration particulière, appelée seuil de percolation. La valeur de ce seuil de percolation dépend en particulier de la taille et de la géométrie des charges mais également parfois du procédé de mise en œuvre. Classiquement, il varie de quelques pourcents à quelques dizaines de pourcent en volume. L'apparition des nanoparticules conductrices (nanotubes de carbone par exemple) a permis récemment d'obtenir des composites conducteurs à partir de seuils de percolation très faibles (inférieurs à 1% en volume), permettant ainsi d'obtenir des gains de masse importants. En effet, pour des applications d'électronique embarquée par exemple, l'obtention de composites conducteurs possédant une masse volumique la plus faible possible est un enjeu industriel important. D'autres voies peuvent être envisagées pour obtenir des composites conducteurs avec une quantité minimale de métal, c'est-à-dire une masse volumique proche de celle de la matrice polymère. Mais avant il est important de pouvoir prédire les propriétés électriques du produit final avant l'étape d'élaboration. Pour cela on a souvent recours à la simulation et aux modèles théoriques.

Notre travail consiste à simuler le phénomène de percolation dans un matériau composite dans le but de déterminer sa conductivité effective. Le mémoire est reparti en trois chapitres: le premier chapitre est destiné à décrire les matériaux composites et leurs méthodes d'élaboration. Le deuxième chapitre concerne les modèles théoriques régissant les propriétés électriques des matériaux composites. Quelques méthodes simulant la percolation dans ces milieux y sont présentés. Au troisième chapitre nous présentons les différents résultats discutés de la simulation.

En fin, nous terminons notre travail par une conclusion générale.



Chapitre I
Introduction aux matériaux
Composites

CHAPITRE I**INTRODUCTION AUX MATERIAUX****COMPOSITES****I. 1. Introduction :**

Les matériaux composites sont utilisés dans de nombreuses applications industrielles pour leurs excellentes propriétés mécaniques et électriques et pour leur masse volumiques, faible par rapport à celles des structures métalliques [1]. Dans ce chapitre, nous présentons les matériaux composites, avec leurs diverses propriétés notamment les propriétés électriques et enfin leurs domaines d'application.

I. 2. Définition d'un matériau composite :

Les composites sont des matériaux constitués de plusieurs composants élémentaires (Fig I. 1) dont l'association confère un ensemble de propriétés qu'aucun des composants pris séparément ne possède. Ils sont donc constitués d'une matrice contenant une ou plusieurs phases (charges) [2].

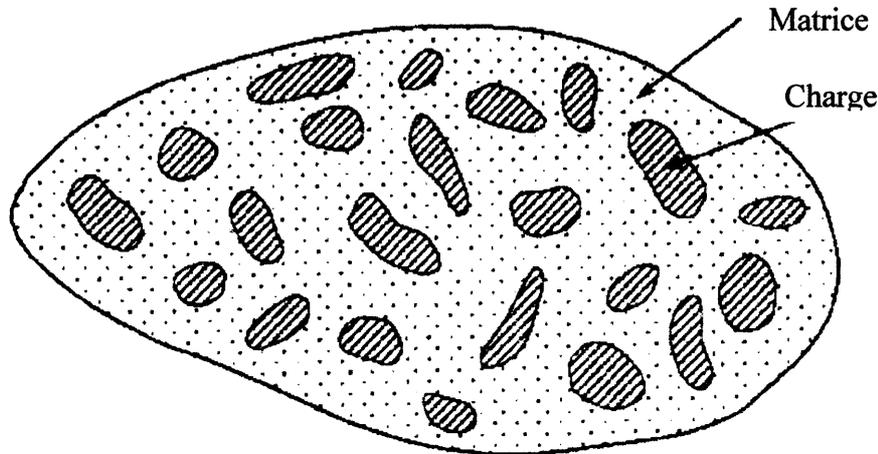


Figure I. 1: Représentation d'un matériau composite.

I. 2. 1. La matrice :

Elle a pour rôle de lier les charges et de répartir les efforts, en outre elle assure la protection chimique et donne la forme au produit réalisé. Le choix de la nature de la matrice dépend de l'utilisation à laquelle est destinée le matériau composite. On utilise généralement des matrices qui se classent en trois grandes catégories: les matrices organiques, matrice céramique et les matrices métalliques [3].

Les types de matrice :

Il existe aujourd'hui un grand nombre de matériaux composites que l'on identifie généralement par trois familles en fonction de la nature de la matrice (Fig. I. 2):

- Les composites à matrice organiques (CMO) qui constituent, de loin les volumes les plus importants aujourd'hui à l'échelle industrielle.
- Les composites à matrice céramique (CMC) réservés aux applications de très haute technicité et travaillant à haute température comme le spatial, le nucléaire, le militaire, et le freinage (freins carbone).
- Les composites à matrice métallique (CMM) pour quelques applications spécialisées [4].

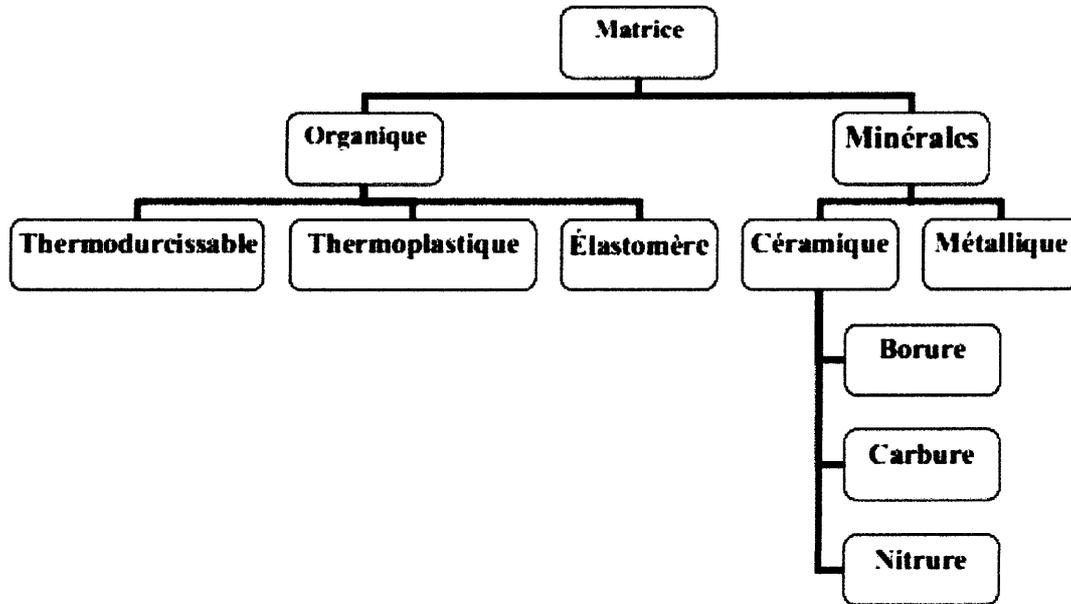


Figure I. 2: Les principales familles de matrices.

I. 2. 2. Charge :

Les charges sont des particules solides que l'on disperse au sein de la matrice. Elles peuvent être minérales, organiques (végétales ou synthétiques) ou métalliques [5].

Les charges et additifs sont incorporées dans un matériau composite pour :

- modifier la couleur
- modifier sensiblement les propriétés mécaniques, électriques ou thermiques
- réduire le coût
- résister au feu
- diminuer le retrait
- faciliter le démoulage

Types de charges :

On distingue plusieurs familles :

- microbilles de verre creuses, ajoutées en plus des renforts principaux, qui améliorent la tenue en compression tout en allégeant la matrice ;
- Noir de carbone utilisé à la fois comme pigment noir, comme barrière anti-UV et comme antioxydant ;

- particules de silice pour rendre la matrice plus isolante (thermiquement, électriquement et acoustiquement), diminuer son retrait au moulage... ;
- Poudres ou paillettes métalliques pour rendre la matrice conductrice de l'électricité et de la chaleur, pour améliorer son usinabilité, sa résistance aux chocs ou à l'abrasion ;
- Billes thermoplastiques ajoutées dans les matrices thermodurcissables, pour améliorer leur ductilité et donc leur résistance à la fissuration [6].

I. 2. 3. Les renforts :

Les renforts contribuent à améliorer la résistance mécanique et la rigidité des matériaux composites et se présentent sous forme filamentaire, allant de la particule de forme allongée à la fibre continue qui donne au matériau un effet directif. Ils sont caractérisés par [7] :

- La nature de la fibre, minérale ou organique
- L'architecture du renfort, unidirectionnel (UD) ou tissu

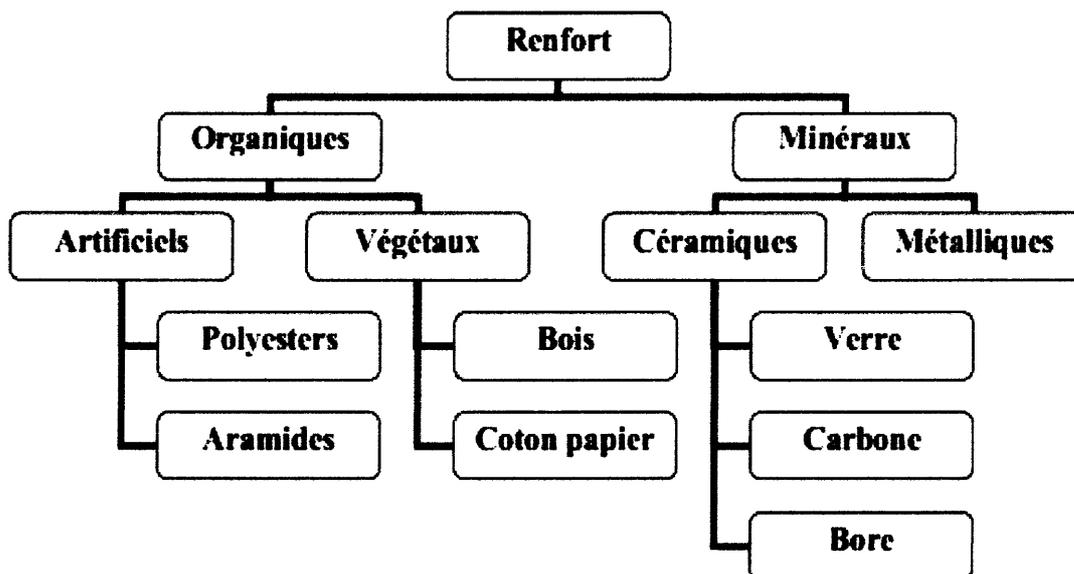


Figure I. 3: Les principaux matériaux de renfort.

I. 3. Quelques procédés de fabrication des structures composites :

I. 3. 1. Moulage au contact :

Procédé manuel pour la réalisation de pièces à partir de résines thermodurcissables, à température ambiante et sans pression. Les renforts sont déposés sur le moule et imprégnés de résine liquide, accélérée et catalysée. Après durcissement de la résine, la pièce est démoulée et détournée (Fig. I. 4) [8].

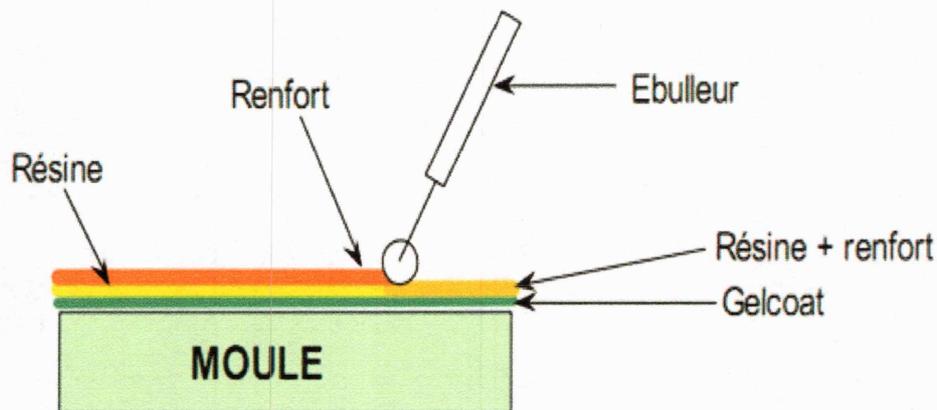


Figure I. 4: Procédé de moulage au contact.

I. 3. 2. Moulage par projection :

Procédé manuel ou robotisé permettant la réalisation de pièces à partir de résines thermodurcissables à température ambiante et sans pression (Fig. I. 5). Les matières premières sont mises en œuvre à l'aide d'une machine dite " de projection" comprenant :

- un dispositif de coupe - projection du renfort (roving)
- un ou deux pistolets projetant simultanément la résine

Les fils coupés et la résine sont projetés sur la surface du moule puis compactés à l'aide de rouleaux et d'ébulleurs. La résine pré-accélérée est catalysée en continu lors de sa projection [8].

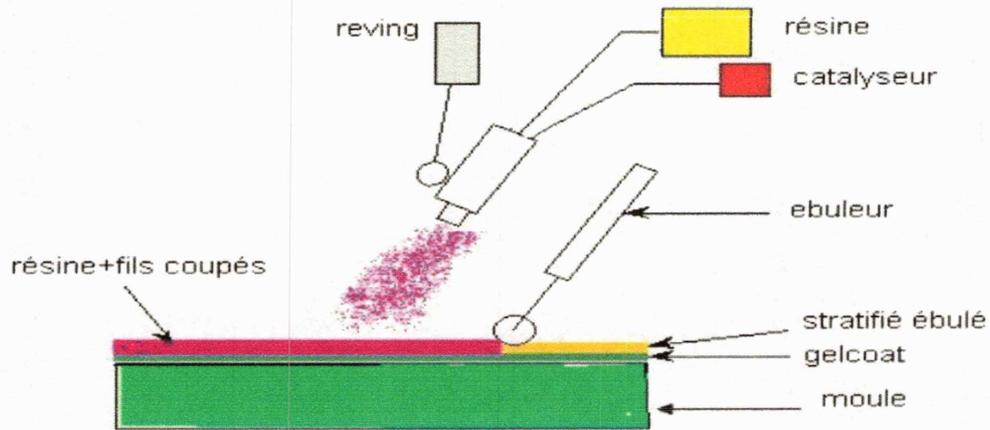


Figure I. 5: Procédé de moulage par projection.

I. 3. 3. Moulage sous vide ou « au sac » :

Le moulage sous vide s'effectue entre moule et contre-moule rigide, semi-rigide ou souple suivant la technologie de mise en œuvre (Fig. I. 6).

Le renfort (mat, tissu, préforme) est placé à l'intérieur du moule ; la résine catalysée est versée sur le renfort. On utilise la pression qui s'exerce sur le moule lors de la mise sous vide pour répartir la résine et imprégner le renfort. La résine peut également être injectée par l'aspiration consécutive au vide [8].

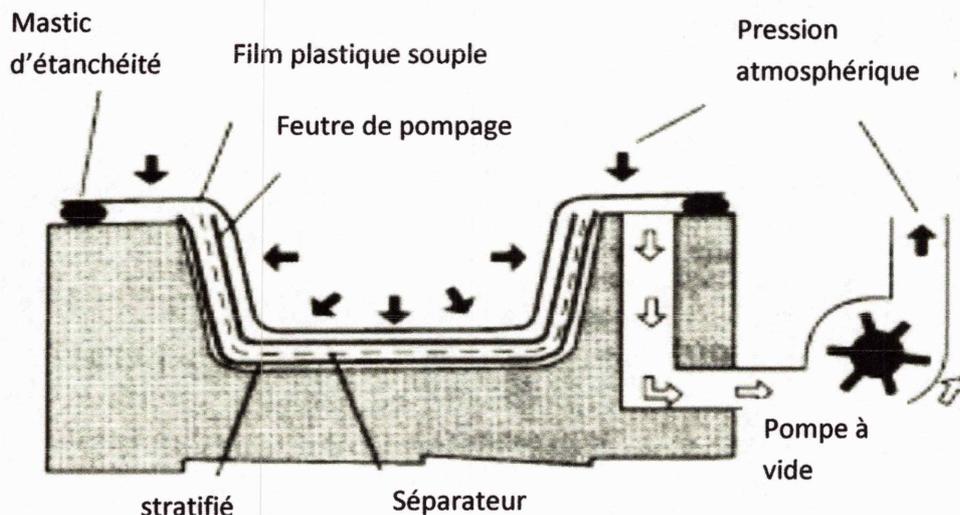


Figure I. 6: Procédé de moulage sous vide [8].

I. 3. 4. Enroulement filamentaire :

Procédé de moulage limité aux formes de révolution (Fig. I. 7). Initialement, destiné à la réalisation d'enveloppes de révolution nécessitant de hautes performances mécaniques par enroulement progressif sur un mandrin, selon un angle déterminé de fils de verre imprégnés de résine. Par la suite, le procédé a été étendu à des structures moins performantes en associant aux rovings bobinés d'autres types de renfort (fils coupés, mat, tissu) appliqués de façon adaptée [8].

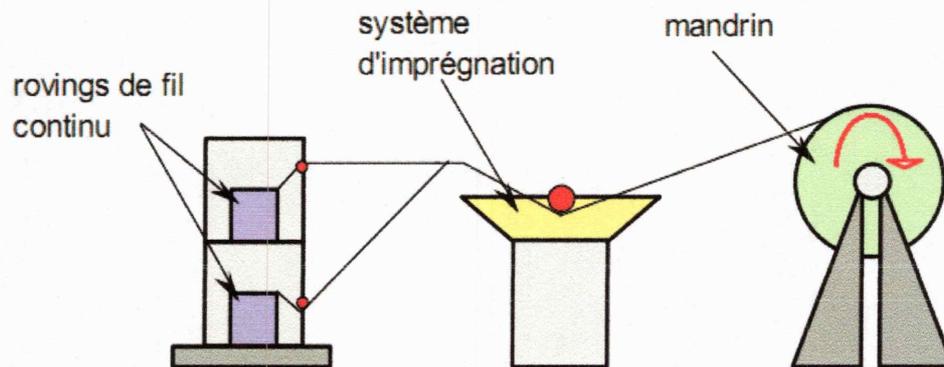


Figure I. 7: Procédé d'enroulement filamentaire.

I. 3. 5. Moulage par injection basse pression de résine – RTM :

Le moulage par injection de résine liquide RTM (Résine Transfert Molding) s'effectue entre moule et contre-moule rigides (Fig. I. 8). Le renfort (mats, préforme, éventuellement tissus) est disposé dans l'entrefer du moule. Une fois celui-ci solidement fermé, la résine, accélérée et catalysée, est injectée sous faible pression (1.5 à 4 bars) à travers le renfort jusqu'au remplissage complet de l'empreinte. Après durcissement de la résine, le moule est ouvert et la pièce démoulée [8].

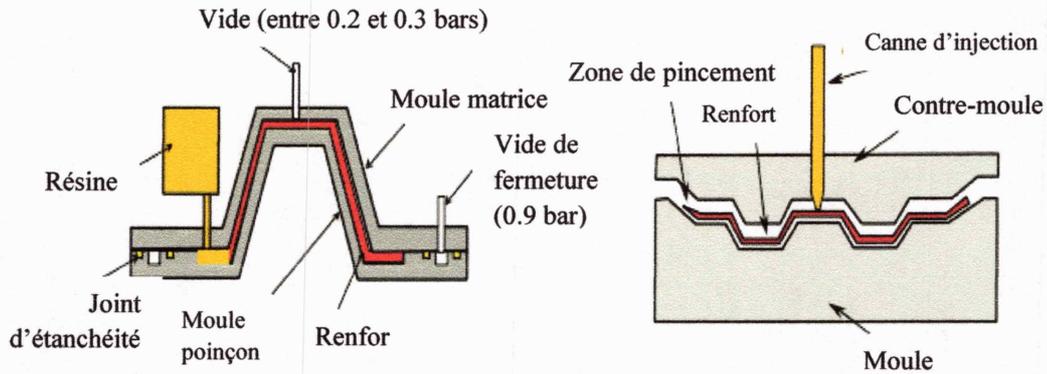


Figure I. 8: Procédé de moulage par injection.

I. 3. 6. Moulage par compression de mat pré imprégné – SMC :

Le mat pré imprégné SMC (Sheet Molding Compound) est constitué d'une nappe de fils coupés ou continus, imprégnée par un mélange de résine polyester, de charges et d'adjuvants spécifiques divers (Fig. I. 9).

Découpé en flans de masse et dimensions déterminées, le mat pré imprégné est moulé à chaud (140 à 160 °C) par compression entre un moule et un contre-moule en acier usiné.

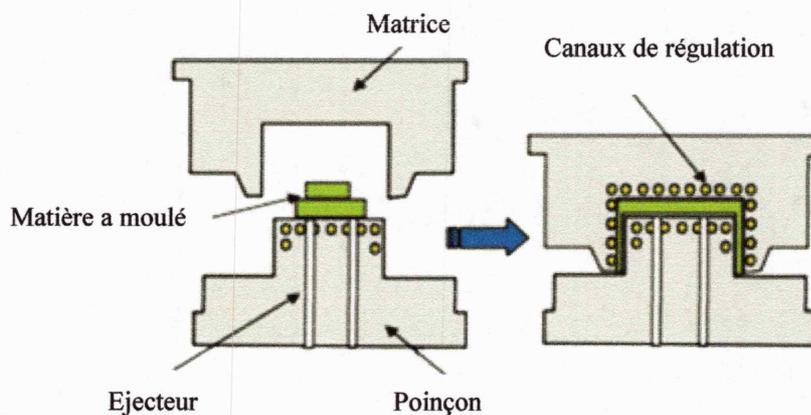


Figure I. 9: Procédé de moulage par compression.

I. 4. Propriétés des matériaux composites :

I. 4. 1. Propriétés mécaniques :

Les études sur les propriétés mécaniques sont intéressantes dans la mesure où elles donnent des informations supplémentaires sur l'élasticité des films composites. Des études ont ainsi montré que les propriétés mécaniques des films composites sont très proches de celles de la matrice [9]. La rupture est un phénomène que connaissent les matières composites sous une forte concentration des charges. Le matériau perd ses propriétés mécaniques et devient cassant. Ce phénomène est décrit par la résistance à la traction.

I. 4. 2. Propriétés électriques :

Dans un matériau composite, la conduction électrique est assurée par des additifs conducteurs incorporés dans le composite isolant. Les additifs sont des charges conductrices de différentes formes et de différentes natures. Les matériaux composites conducteurs trouvent de nombreuses applications découlant de la variation de leur résistivité en combinant la conductivité électrique avec celle du renforcement mécanique. Ces propriétés électriques sont influencées par différents facteurs tels que le taux de charge dans le composite [10,11], la présence des molécules d'eau dans le matériau en ajoutant une conductivité ionique [10], La manière dont la matrice composite est mélangée avec la charge va aussi influencer la valeur de la conductivité [12].

I. 5. Modélisation des matériaux composites :

La connaissance des diverses approches de modélisation, choisies par les nombreux auteurs qui se sont préoccupés des matériaux composites, peut sembler un peu fastidieuse. Néanmoins, il paraît indispensable de présenter ces nombreuses possibilités qui traduisent à la fois l'intérêt, la complexité du matériau et aussi les difficultés rencontrées lors de la modélisation de phénomènes réels [13].

I. 5. 1. théorie du milieu effectif :

La théorie du milieu effectif de mélanges binaires ou d'ordre supérieur est basée sur le fait que chaque grain ellipsoïdal est, en moyenne, entouré par un mélange qui a la conductivité effective du milieu composite. Toutes les théories du milieu effectif utilisent les équations de Maxwell et se réduisent à une équation aux limites pour les très faibles fractions volumiques d'inclusion [14].

A. En utilisant les équations de Maxwell :

La conductivité d'un milieu composite, où des grains isolants sont enfermés dans une matrice conductrice, est donnée par les relations suivantes [14]:

- Pour une sphère :

$$\sigma_m(P) = \sigma_h \left[1 - \frac{3}{2}P \right] \quad (I.1)$$

- pour un ellipsoïde orienté :

$$\sigma_m(P) = \sigma_h \left[1 - \left(\frac{P}{l_f} \right) \right] \quad (I.2)$$

- Pour des ellipsoïdes orientés aléatoirement :

$$\sigma_m(P) = \sigma_h (1 - m_f P) \quad (I.3)$$

Avec :

- $\sigma_m(P)$: conductivité du milieu composite
- σ_h : conductivité de la phase de plus forte conductivité
- P : fraction volumique de la phase de plus faible conductivité
- l_f : coefficient de dépolarisation pour les ellipsoïdes orientés dans le sens du courant
- m_f : coefficient qui peut être calculé dans le cas où la phase de plus faible conductivité est parfaitement dispersée.

Ces expressions sont valables quand $P < 0.1$.

B. Milieu symétrique et asymétrique de Bruggeman :

Pour le milieu symétrique l'équation de la conductivité d'un milieu symétrique, dans sa forme générale, pour des ellipsoïdes orientés est donnée par la relation [15] :

$$P \frac{\sigma_i - \sigma_m}{\sigma_i + \left(\frac{1-l}{l}\right)\sigma_m} + (1-P) \frac{\sigma_h - \sigma_m}{\sigma_h + \left(\frac{1-l}{l}\right)\sigma_m} = 0 \quad (I.4)$$

Dans ce cas :

$$l_f = l$$

Où l_f est le coefficient de dépolariation des ellipsoïdes de forte conductivité.

Le terme $(1 - l)/l$ est souvent écrit $\frac{P_c}{(1 - P_c)}$, P_c étant la fraction volumique critique (seuil de percolation) où la phase conductrice (σ_h) forme, dès le départ, un chemin continu à travers le milieu $(1 - P_c)$ [14].

Si $\sigma_i = 0$, nous obtenons :

$$\sigma_m = \sigma_h \left(1 - \frac{P}{1 - l_f} \right) \quad (I.5)$$

Une transition métal-isolant intervient pour $l_f - 1 = P$.

Pour le milieu asymétrique, envisagé par Bruggeman, il peut être vu comme composé d'un nombre infini en tailles d'ellipsoïdes de tailles différentes encapsulés par le milieu. Le revêtement constitue une phase hôte ou une matrice hôte et l'intérieur de la particule correspond à une phase dispersée.

Quand la conductivité de la phase dispersée est nulle ($\sigma_i = 0$), les expressions de Bruggeman (I. 1), (I. 2) et (I. 3) deviennent, avec la relation (I. 4), les suivantes :

- Pour un ellipsoïde orienté :

$$\sigma_m = \sigma_h (1 - P)^{1/(1 - l_f)} \quad (I.6)$$

- Pour des ellipsoïdes orientés aléatoirement:

$$\sigma_m = \sigma_h (1 - P)^{m_f} \quad (I.7)$$

Ici P est la fraction volumique de la phase dispersée isolante.

Quand la conductivité de la phase dispersée devient infinie, les équations doivent être écrites en termes de résistivité et avec une fraction volumique P correspondant à la phase parfaitement conductrice.

Dans ces formulations la transition apparait pour $P=1$.

La théorie de Bruggeman asymétrique est largement utilisée dans le cas des émulsions (eau d'huile), des mousses et dans les phénomènes de percolation de l'eau enfermée dans le sol [16].

Ces équations et l'équation de Bruggeman symétrique vont constituer la base de la théorie du milieu généralisé développée par McLachlan [17] dans le domaine des milieux composites conducteur-isolant fonctionnant dans le domaine des basses fréquences.

Pour expliciter et mieux expliquer les idées qui ont conduit à cette loi, nous devons évoquer les théories de percolation.

I. 5. 2. Théorie de la percolation :

La théorie de percolation donne une équation phénoménologique de la conductivité (ou de la résistivité) d'un milieu composite près de la transition métal-isolant (ou conducteur parfait-conducteur). Bien que la théorie ait été largement développée dans le contexte des réseaux réguliers, elle est, aussi, utilisable pour décrire la conductivité de systèmes continus tels que les oxydes métaux-métaux (cermet qui ont des applications dans le domaine de l'infrarouge) et des mélanges polymères-graphite [18].

Dans un milieu continu ou un continuum, la théorie de percolation prédit que près d'une transition de phase métal-isolant ou autres, la conductivité (ou la résistivité) peut être décrite par une équation de percolation de la forme suivante :

$$\sigma_m \text{ est proportionnelle à } \left(1 - \frac{P}{P_c}\right)^t.$$

Bien que la valeur de l'exposant t des composites soit souvent comprise entre 1.65 et 2, il est quelquefois possible de trouver des valeurs supérieures à 2.

De très fortes valeurs de t sont obtenues quand les particules conductrices ont des géométries extrêmes. Des valeurs de 1.95 sont obtenues avec des particules de carbone et des valeurs de 3.1 avec des cylindres fins de graphite enfermés dans une matrice de polymères.

La théorie de percolation donne des indications sur ce qui peut se passer lorsque l'on augmente la fraction volumique de la charge conductrice pour s'approcher de la fraction volumique critique, mais ne traduit pas toujours la réalité en donnant des valeurs précises de conductivité lorsque l'on s'approche du seuil de percolation (P_c).

I. 5. 3. Théorie du milieu effectif généralisée (GEM) :

La conductivité d'un milieu composite peut, en principe et pour des microstructures bien définies, être décrite par les équations du milieu symétrique ou asymétrique de Bruggeman. Plusieurs systèmes ont été étudiés quand la phase conductrice peut complètement mouiller et recouvrir la phase isolante ou l'inverse. Des cas où aucune phase ne mouille l'autre phase ou l'une des phases constitue un milieu déjà symétrique ont été observés. McLachlan [17] a proposé une formule d'interpolation qui est basée sur les

équations de Bruggeman adaptée au cas où il y a des revêtements incomplets de la dispersion.

Quand un conducteur (σ_h) est le milieu hôte et que la phase dispersée est isolante ($\sigma_i = 0$), les équations (I.6) et (I.7) prennent la forme :

- pour les ellipsoïdes orientés :

$$\sigma_m = \sigma_h \left(1 - \frac{P}{P_c}\right)^{\frac{P_c}{1-l_f}} \quad (\text{I. 8})$$

- Pour les ellipsoïdes orientés aléatoirement :

$$\sigma_m = \sigma_h \left(1 - \frac{P}{P_c}\right)^{m_f P_c} \quad (\text{I. 9})$$

Ou en général :

$$\sigma_m = \sigma_h \left(1 - \frac{P}{P_c}\right)^t \quad (\text{I. 10})$$

Ces équations qui ont la forme d'une équation de percolation, se réduisent à une forme de Bruggeman symétrique quand $P_c = 1 - l_f$ et à une forme asymétrique quand $P_c = 1$.

Les équations de l'exposant t sont données par :

$$t = \frac{P_c}{1-l_f} \quad (\text{I. 11})$$

ou

$$t = m_f P_c$$

Ces équations peuvent être employées pour déduire les formes des particules et les distributions spatiales des inclusions dans un milieu composite à partir des résultats expérimentaux.

Une forme généralisée des expressions précédentes a été proposée par McLachlan et constitue l'équation du milieu effectif généralisé (**GEM**). Elle s'écrit :

$$\frac{P(\sigma_i^{1/t} - \sigma_m^{1/t})}{\sigma_i^{1/t} + A\sigma_m^{1/t}} + \frac{(1-P)(\sigma_h^{1/t} - \sigma_m^{1/t})}{\sigma_h^{1/t} + A\sigma_m^{1/t}} = 0 \quad (\text{I. 12})$$

La constante A étant donnée par :

$$A = \frac{P_c}{1-P} = \frac{1-l_f}{l_f} \quad (\text{I. 13})$$

A dépend du composite particulier ou du milieu. Cette équation n'est pas obtenue mathématiquement, mais déduite à partir d'observations expérimentales et doit être confirmée dans ses formes limites et validée sur divers types de milieu composite.

I. 6. Applications des matériaux composites :

Les applications des matériaux composites sont nombreuses est les principaux domaines d'application de ces composites sont le transport, la construction et l'électronique. Si de puis le milieu des années 1990, l'aviation et le militaire ne sont plus, relativement aux autres, les marchés principaux des composites, la construction, l'électronique et le transport sont en pleine évolution [19].

Les composites à base de fibres dans le domaine de transport sont largement utilisés pour les avions militaires où ils composent des pièces structurelles comme le fuselage, les ailes et les ailerons. Les fibres aramides, résistantes aux chocs et transparentes aux ondes électromagnétiques, garnissent les bords d'attaque ailes et les radomes.

Aussi dans le domaine de l'électricité et l'électronique on utilise les composites qui sont des matériaux privilégiés lorsqu' une bonne isolation électrique et une résistance à la corrosion élevée sont exigées. C'est le cas pour les chemins de câbles et toutes les installations souterraines par exemple.

De nombreux appareils électriques utilisent les composites organiques soit comme support pour leur électronique interne soit comme boîtier offrant une bonne isolation électrique. Le moulage par compression des composites thermodurcissables est largement répandu pour les panneaux et les corps de protection des instruments électriques. La même technique de production est utilisée pour les éléments de cuisinière qui doivent offrir en plus une bonne résistance à la chaleur et à l'impact. Les thermodurcissables sont les matériaux privilégiés depuis de nombreuses années pour ces applications et pour les circuits imprimés. Il est néanmoins envisagé de fabriquer des circuits tridimensionnels pour lesquels les thermoplastiques pourraient être intéressants.

Il est possible de citer un autre domaine d'application des matériaux composites. Le génie mécanique, conçoit de plus en plus de pièces et d'éléments de structure en profitant des facilités de mise en œuvre des composites. Ils permettent par exemple d'augmenter les cadences de production ou les vitesses d'usinage en diminuant les masses inertielles, en

augmentant la résistance à la fatigue et à la corrosion, ou en intégrant plusieurs fonctions dans une même pièce.

Les applications biomédicales des composites sont émergentes aussi bien pour les nouvelles générations de prothèses et orthèses que pour le renforcement de systèmes dentaires ou pour les implants où des composites biocompatibles et biorésorbables sont actuellement développés.

I. 7. Conclusion :

Bien que les matériaux composites soient majoritairement des isolants électriques, l'incorporation des charges conductrices dans une matrice isolante permet d'obtenir des matériaux présentant à la fois une conductivité électrique élevée, une faible densité et une mise en œuvre aisée. Ces matériaux offrent un intérêt majeur dans de nombreuses applications. Le choix des matériaux reposant sur leurs propriétés électriques et/ou mécaniques ... est très déterminant pour le produit final.





Chapitre II

Simulation de la percolation dans un matériau composite

CHAPITRE II**SIMULATION DE LA PERCOLATION DANS UN
MATERIAU COMPOSITE****II. 1. Introduction :**

Pendant longtemps, la recherche s'est focalisée sur l'étude du seuil de percolation. En conséquence, de nombreuses méthodes ont été développées pour calculer ou estimer la valeur de P_c . Dans ce chapitre nous allons présenter les méthodes de simulation du phénomène de percolation d'une phase conductrice dans une matrice isolante. Nous aborderons les notions de seuil de percolation et les méthodes utilisées pour sa détermination.

II. 2. La percolation :

La théorie de percolation a été initialement introduite par *Broadbent et Hammersley* en 1956 [20] pour rechercher les conditions d'écoulement d'un fluide à travers un milieu poreux. Cette théorie couvre de nombreux domaines d'applications tels que, par exemple la propagation d'une épidémie, des feux de forêts ou la transition isolant/conducteur dans les composites...

II. 2. 1. Définition de la percolation:

Le mot percolation est tiré du latin "percolar" signifiant couler à travers [21]. La percolation est un modèle qui traite les problèmes qui découlent des milieux désordonnés. En effet face aux difficultés rencontrées lors de la transmission d'informations dans ces milieux, la percolation se présente comme la théorie idéale pouvant élucider un grand nombre de ces problèmes [22].

II. 2. 2. Types de percolations :

Il existe trois types de percolations :

Percolation de liens :

D'une façon générale, la percolation de liens concerne des structures en grille et où le contact entre deux mailles voisines s'établit à l'aide d'un lien (Fig. II. 1).

Pour assurer le passage de l'information dans le système, il faut qu'une suite de sites connectés entre eux par des liens intègres existe [23]. La probabilité pour qu'un lien soit actif est noté p , est pour laquelle un lien soit coupé est q avec $q = 1 - p$.

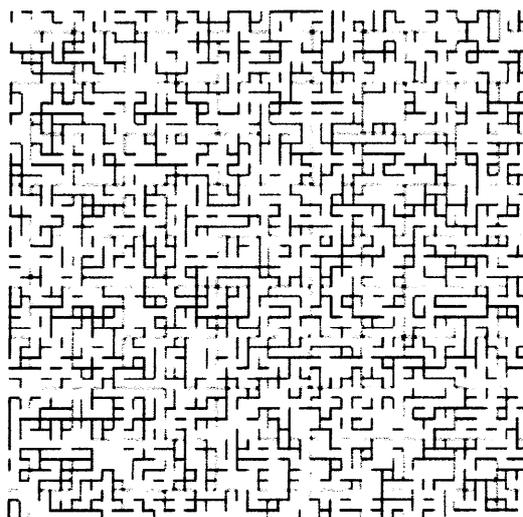


Figure II.1 : Percolation de liens.

Percolation de sites :

Un ensemble d'éléments (sites) appartenant à un système sont reliés entre eux par des liens. La variation d'activité des sites entraîne la formation d'une structure aléatoire appropriée, la transmission d'information dépend entièrement de cette structure [23].

Lorsqu'un nombre fini de sites actifs sont reliés entre eux par des liens, on dit qu'ils forment un amas fini. Si deux sites sont reliés entre eux au moins par un lien, on dit qu'ils appartiennent au même amas (Fig. II. 2).

La probabilité pour qu'un site soit actif est proportionnelle à p et celle pour la quelle il est inactif correspond à q , de telle manière que $q=1-p$ [24].

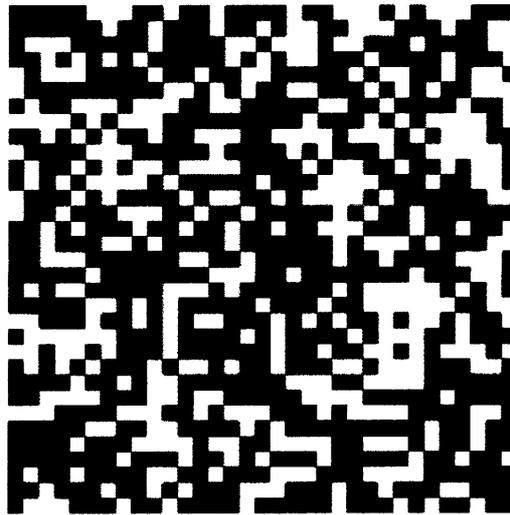


Figure II.2: Percolation de sites.

Percolation mixte :

Le problème de percolation mixte génère une dynamique plus complexe car le seuil de percolation combine deux paramètres : probabilité d'activité des sites p^s et probabilité d'activité des liens p^b [14].

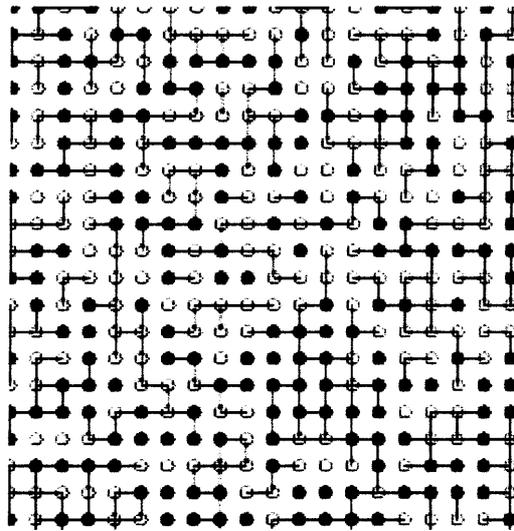


Figure II.3: Percolation mixte.

II. 2. 3. Seuil de percolation:

Entre plusieurs sous unités d'un système quelconque lorsque $p=0$, toutes les sous-unités sont totalement isolées les unes des autres. Par contre, lorsque $p=1$, toutes les sous-unités sont connectées à leurs voisines, il ya donc connexion du système d'un bout à l'autre [25].

En commençant par $P = 0$, on crée des connexions de telle sorte qu'on augmente la valeur de p . La valeur critique p_c de p est définie au point où il ya une première connexion d'un bout à l'autre du système et est appelée seuil de percolation.

Pour $P < P_c$, il n'existe aucune connexion continue. Pour $P > P_c$ il existe au moins une connexion continue des sous-unités d'un point à l'autre du système (Fig. II. 4).

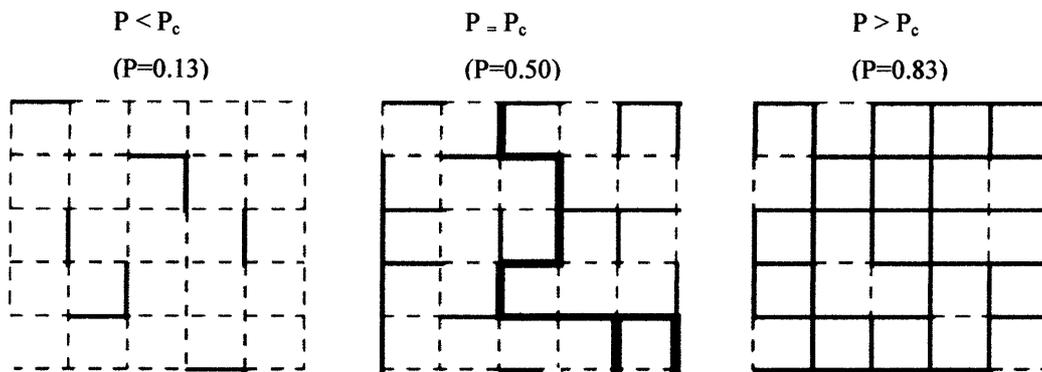


Figure II.4 : Apparition d'une connexion du système d'un bout à l'autre à partir d'une certaine proportion [26].

L'existence d'un chemin conducteur entre deux sites actifs dépend de l'existence de sites conducteurs reliés par des liens actifs. S'il existe un chemin conducteur entre un ensemble de site relié, on dit qu'ils appartiennent tous au même amas. Le réseau de liens est généralement utilisé dans le réseau triangulaire ou nid d'abeille, il est aussi utilisé dans le réseau carré à deux dimension, ou cubique à trois dimensions.

Dans la théorie de la percolation, l'existence du seuil est fondamentale. Cette valeur critique se caractérise par [27].

$$P(p) = \begin{cases} = 0 & p < p_c \\ > 0 & p > p_c \end{cases} \quad (\text{II. 1})$$

A l'exception de quelques cas particuliers pour lesquels les valeurs de p_c sont calculées analytiquement [28], p_c est estimé au moyen de simulations numériques (Tableau II. 1).

Réseau	Dimension	Site	Lien
Nid d'abeille	2	0.6962	0.65271
Carré		0.59275	0.05*
Triangulaire		0.5*	0.34719
Diamant	3	0.428	0.388
Cubique simple		0.3117	0.1492
Cubique centré		0.245	0.1787
Cubique face Centré		0.198	0.199

Tableau II.1 : Valeurs de p_c pour différents réseaux à 2 et 3 dimensions (* valeurs exactes).

II. 2. 4. Probabilité de percolation:

Dans les modèles de percolation, on obtient intuitivement les propriétés suivantes :

- La probabilité de percolation est nulle si le taux d'activité est nul
- La probabilité de percolation est certaine si le taux d'activité est de 100%
- La probabilité de percolation est une fonction non-décroissante de p

En Conséquence, la forme générale de la fonction de probabilité de percolation $P(p)$ est présentée sur la (Figure II.5) :

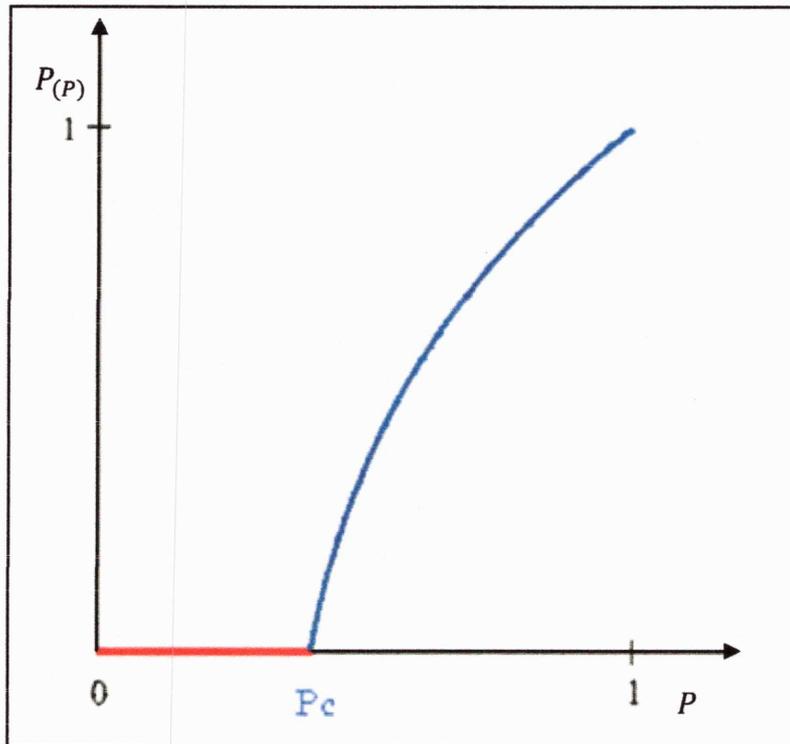


Figure II.5 : Variation de la probabilité de percolation

II. 3. Effet de taille finie :

Dans des systèmes finis comme ceux simulés sur un ordinateur, la valeur déterminée du seuil n'est généralement pas la valeur exacte. Ainsi, chaque valeur obtenue par des méthodes numériques ou expérimentales doit être extrapolée avec précaution à un système de taille infinie. Les régimes spatiaux s'associent à la notion de limite thermodynamique, ce qui peut être mis en parallèle avec le régime asymptotique de problèmes temporels plus courants en économie [14].

La limite thermodynamique d'un système situé dans un espace de dimension d s'obtient sous deux conditions : d'une part, la taille linéaire du système L doit être considérée comme infinie à l'échelle des constituants élémentaires, ce qui en parallèle permet l'analyse de leur corrélation statistique. D'autre part, les effets de bords doivent pouvoir être négligés. Ceci autorise alors une invariance par translation, le placement arbitraire de l'origine spatiale et l'élimination des caractères non universels liés à la forme du système. Après le calcul des grandeurs globales, il faut dans un premier temps diviser ces grandeurs par L^d pour les ramener à des grandeurs volumiques. Dans un second temps, on détermine la limite thermodynamique en faisant tendre L vers l'infini pour une même densité [14].

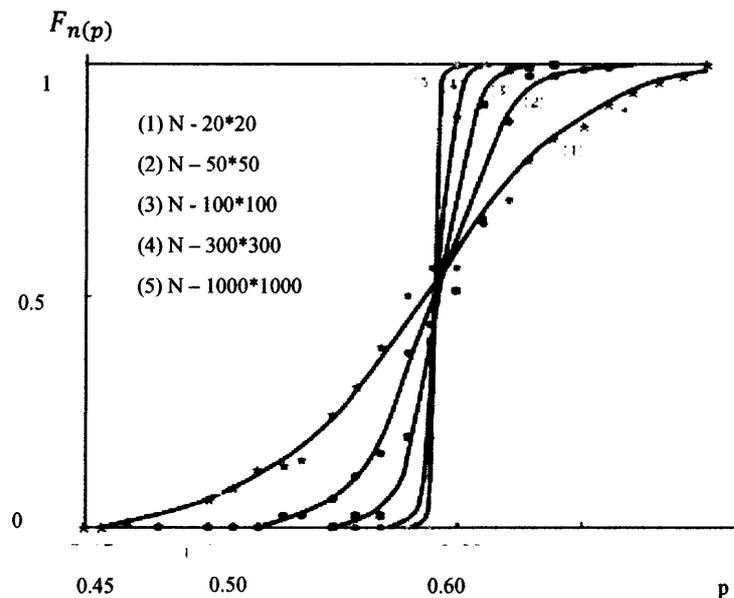


Figure II.6 : Probabilité de conduction et taille du réseau.

II. 4. Frontières du système :

L'existence et la nature des frontières ont une influence sur la connexité des systèmes dans son voisinage, à travers les effets de bords dans les simulations numériques ou les effets de surfaces dans les simulations analogiques. Dans ces conditions, cette variation locale peut avoir des conséquences sur l'ensemble du système par le biais d'un effet double :

- un site à la frontière ayant moins de voisins que ceux au milieu du réseau, la probabilité qu'il soit connecté à l'amas infini est plus faible (effet de « déplétion »).

- selon le problème considéré, la probabilité de distribution des liens peut prendre une valeur différente à la frontière et à l'intérieur.

Dans un réseau de taille L en dimension d , un raisonnement qualitatif montre que le nombre δN d'éléments touchés par les effets de bords va varier comme L^{d-1} , sauf pour des géométries très spéciales. A densité constante, le nombre total N d'éléments varie comme L^d . Dans la limite thermodynamique $L \rightarrow \infty$, la proportion $\delta N / N$ tend alors vers $1/L$, c'est-à-dire zéro. Il devient ainsi possible de négliger les effets de bords [14].

II. 5. Longueur de corrélation et lois d'échelle :

La taille finie des réseaux apparaît comme un inconvénient dans la précision des calculs liés au seuil de percolation et aux autres grandeurs statistiques. Lorsque p est inférieur au seuil critique, le réseau est formé d'amas de toutes tailles allant de l'unité jusqu'à une longueur maximale. Cette valeur maximale correspond à la longueur de corrélation du système. Dans un réseau de taille infinie, la longueur de corrélation devient infinie au seuil de percolation. A l'approche du seuil, l'échelle de taille sur laquelle il faudrait effectuer une moyenne devient par conséquent de plus en plus grande.

De façon générale, les phénomènes critiques spatiaux ne se manifestent que dans la limite thermodynamique. Dès lors, la divergence d'une longueur de corrélation n'est observable que dans un système d'extension L infinie. Au point critique $P = P_c$, les caractéristiques du système sont alors celles des grandeurs thermodynamiques,

Au voisinage de P_c , l'insensibilité du comportement des grandeurs caractéristiques d'un problème de percolation aux détails microscopiques de la structure sur lequel il évolue, se résume dans les relations appelées « lois d'échelle ». Celles-ci concernent principalement, $\xi(P)$, $P_\infty(P)$, $S(P)$ et $G(P)$. Le degré de validité de ces relations n'étant pas totalement connu, les termes des diverses équations seront séparés par la relation logarithmique.

Pour des valeurs inférieures au seuil aussi bien que pour des valeurs supérieures, la taille linéaire des amas finis se caractérise par la longueur de corrélation. Elle se définit comme la distance moyenne entre deux sites du même amas. Au voisinage de P_c c'est-à-dire lorsque $P - P_c$ est faible, la longueur de corrélation augmente selon [28] :

$$\xi(P) = |P - P_c|^{-\nu'} \quad P > P_c \quad (\text{II. 2})$$

L'exposant ν' est identique pour $P > P_c$ et $P < P_c$ et il ne dépend que de la dimension d . Autrement dit, la longueur de corrélation croît au dessous du seuil de la même façon critique qu'elle décroît au dessus du seuil [29]. Pour un site, la probabilité d'appartenir à l'amas infini $P_\infty(P)$ dépend de la proportion d'éléments actifs au voisinage du seuil critique. La décroissance de $P_\infty(P)$ vers 0 s'effectue selon une loi de puissance de $(P - P_c)$ au fur et à mesure que p tend vers P_c par valeurs supérieures. De façon formelle, ceci se traduit par [30] :

$$P(P) = (P - P_c)^\beta \quad (\text{II. 3})$$

Le coefficient β dépend lui aussi de la dimension d du modèle, mais contrairement à la longueur de corrélation, la loi d'échelle n'est valide que pour des valeurs supérieures au seuil. En effet, la probabilité d'existence d'un amas infini est nulle pour $P < P_c$ d'où une probabilité nulle d'en faire partie. La taille moyenne des amas finis $S(P)$ suit également une loi d'échelle. Au voisinage de P_c , son évolution est supposée diverger selon la relation suivante [28] :

$$S(P) = |P - P_c|^{-\gamma} \quad (\text{II. 4})$$

La aussi, le coefficient γ dépend de la dimension où évolue le problème. De plus, la valeur de γ est identique au dessus et au dessous du seuil de percolation.

Le nombre d'amas normalisé par site suit également une loi d'échelle selon la relation suivante :

$$G(P) = |P - P_c|^{2-\alpha} \quad (\text{II. 5})$$

Si nous nous intéressons à la variation de la conductivité au-dessus du seuil, on pose que sa partie singulière varie encore selon une loi de puissance :

$$\sigma(P) = (P - P_c)^t \quad (\text{II. 6})$$

L'exposant " t " de l'expression (II.6) est un invariant par rapport au type de réseau étudié. Il ne dépend, la encore, que de la dimensionnalité " d " du système.

Le tableau (II.2) donne quelques valeurs typiques des exposants critiques pour les différents paramètres et pour les dimensions 2 et 3.

EXPOSANT CRITIQUE	d=2	d=3
G-nombre total d'amas	-2/3	-0.6
β -amas infini	5/36	0.44
γ -taille moyenne des amas finis	43/3	1.8
ν -longueur de corrélation	4/3	0.88
t-conductivité	1.3	2.0

Tableau II.2 : Quelques exposants critiques au voisinage du seuil de percolation.

II. 6. Méthodes d'estimation du seuil de percolation:

II. 6. 1. Détermination numérique :

Une méthode d'estimation de P_c est la détermination numérique, celle-ci réside dans l'observation de phénomènes de transports qui ne sont possibles que s'il existe un amas percolant (par exemple, la conduction électrique). L'analyse statistique des valeurs du seuil obtenues sur un nombre important de configurations d'extension finie donne la limite déterministe de P_c [14].

II. 6. 2. Méthode des séries :

La méthode consiste à déterminer par comptage direct sur de petits échantillons, la statistique des amas sur le réseau et à l'extrapoler au moyen de développements mathématiques [14].

II. 6. 3 Méthode de renormalisation :

Les méthodes de normalisation sont un autre moyen pour estimer le seuil de percolation et les exposants critiques. La possibilité de normalisation tient à la propriété de self-similarité. L'idée de base tient dans l'hypothèse qu'il existe une seule échelle pour caractériser le problème : la longueur de corrélation ξ qui diverge à p_c . En effet, si l'on s'intéresse aux amas de diamètre L , avec L beaucoup plus grand que le pas du réseau, il faut distinguer les situations où $L < \xi$ et $L > \xi$. Pour $P = P_c$ on a une longueur de corrélation infinie ($\xi = \infty$) et toutes les longueurs finies (L par exemple) sont beaucoup plus petites que ξ . Par suite, l'échelle d'observation du système au seuil de percolation n'a plus

d'importance car le système apparaît semblable, à de simples facteurs d'échelle près, quelle que soit l'échelle utilisée. Il est alors possible de renormaliser le système en ne prenant plus comme élément de base les sites, mais les régions de taille inférieure à ξ ayant un diamètre K (Pas du réseau initial). Cette opération peut être répétée avec le même facteur d'échelle K sur le nouveau réseau formé par ces éléments composites, etc. A $p = p_c$, aucun changement significatif ne peut intervenir à cause de cette renormalisation même après de nombreuses « moyennes » de ce type. En ce sens, p_c est un point fixe mathématique de la transformation de renormalisation. L'étude des super sites ainsi créés, permet de déterminer la valeur du point critique qui correspond au seuil de percolation [14].

II. 7. Conclusion :

Le seuil de percolation p_c dépend du model de percolation choisi, de la géométrie ainsi que de la dimension d du réseau et non de l'interprétation physique des sites occupés ou des liens présents ni de la façon dont on réalise l'augmentation de p à partir de zéro. Ceci est une des caractéristiques fondamentales de l'aspect universel de la percolation.



Chapitre III

Résultats et discussion

CHAPITRE III

RESULTATS ET DISCUSSION

III. 1. Introduction

Dans ce chapitre nous présentons la méthode suivie pour estimer la résistivité (conductivité) d'un matériau composite ainsi que l'organigramme du programme utilisé. les résultats sont obtenus par simulation d'une structure 3D représentant un échantillon composite contenant une concentration donnée p de particules conductrices.

III. 2. Hypothèses de départ

Pour estimer la résistivité effective de nos échantillons composites nous avons établi les hypothèses suivantes:

- à la concentration $p=0$, la résistivité du composite est celle de la matrice.
- à la concentration $p=1$, la résistivité du composite est celle des inclusions conductrices.
- la percolation est détectée lorsque les inclusions forment un chemin conducteur reliant les deux faces opposées de l'échantillon.

III. 3. Calcul de la résistivité effective

Le calcul de la résistivité est basé sur la détection des chemins conducteurs reliant les électrodes externes.

- ❖ nous avons choisi la direction verticale lors de la recherche d'amas percolant.

- ❖ Dès que la longueur de l'amas atteint l'épaisseur de l'échantillon on parle de percolation et l'amas est considéré comme une résistance dont la valeur est donnée par:

$$R = \rho * \frac{l'}{s} \quad (III.1)$$

avec ρ : Résistivité de la phase conductrice

l' : épaisseur de l'échantillon

s : section de l'amas

- ❖ il suffit de compter le nombre d'amas percolant n_{br} dans la même direction pour calculer la résistance équivalente R_{eq} . Cette dernière est donnée par :

$$R_{eq} = \frac{R}{n_{br}} \quad (III.2)$$

- R : Résistance de l'amas
- n_{br} : nombre d'amas

(les amas sont considérés comme des résistances en parallèle)

- ❖ la résistance équivalente des amas R_{eq} est considérée comme étant parallèle à la résistance de la partie non occupée de la matrice R_{mat} :

$$R_c = \frac{R_{eq} * R_{mat}}{R_{eq} + R_{mat}} \quad (III3)$$

- R_c : Résistance effective de l'échantillon
- ❖ la résistivité effective du composite est déduite de l'équation (III. 3) comme suit:

$$\rho_{eff} = R_c * \frac{A}{l'} \quad (III4)$$

avec A : surface de l'électrode

l' : épaisseur de l'échantillon

III. 4. Organigramme

Le programme de simulation est décrit par l'organigramme suivant :

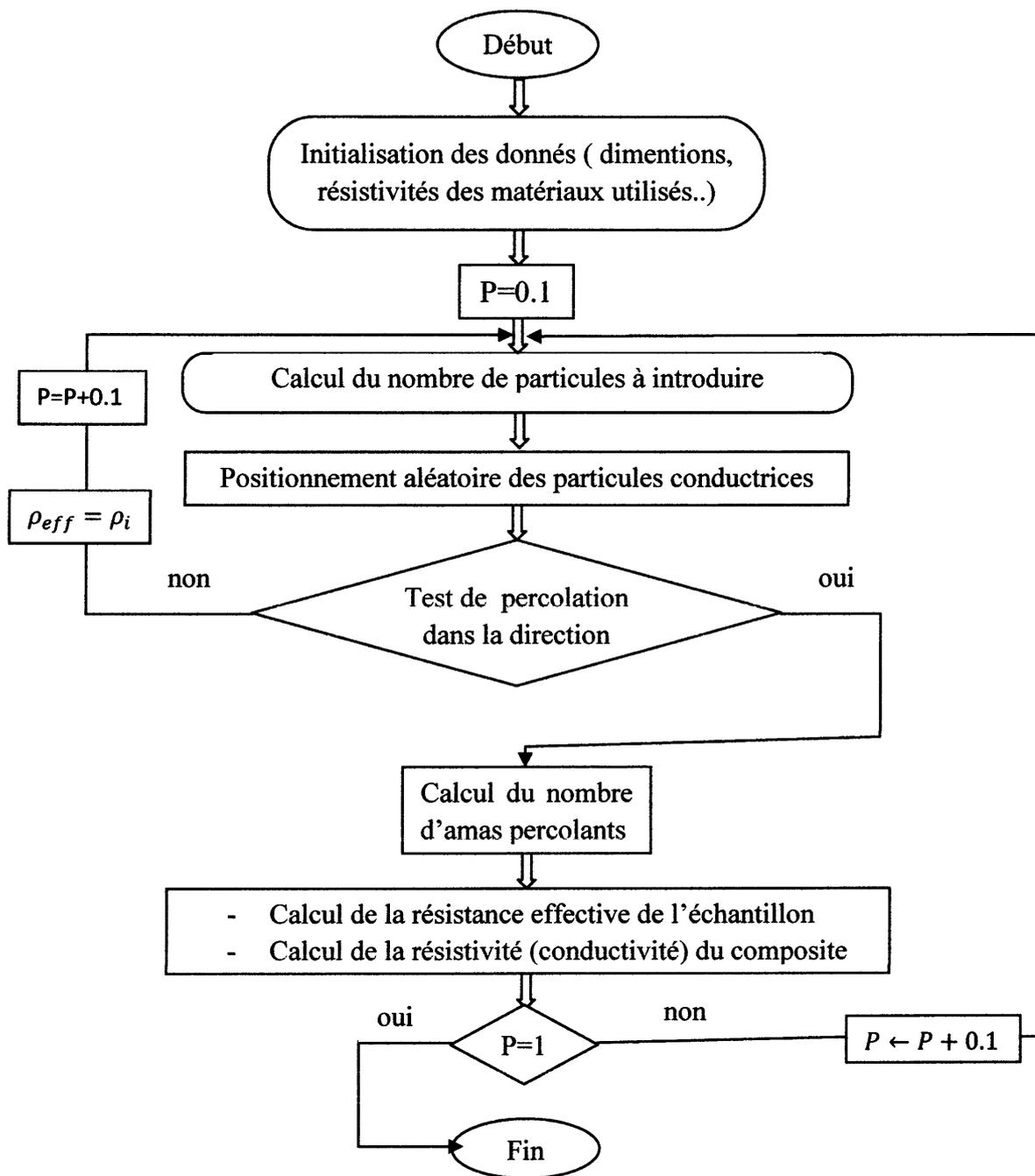


Figure. III. 1 : Organigramme de simulation.

III. 5. Résultats

les résultats représentent une moyenne effectuée sur cinq configurations différentes.

III. 5. 1. Phénomène de percolation

La figure (III. 2) représente l'évolution de la résisivité effective ρ d'un échantillon composite cubique de volume 10^3 mm^3 en fonction de la fraction volumique des inclusions. ce composite est constitué d'une matrice de Chlorure de polyvinyle (PVC) contenant des particules d'argent (Ag) de diamètre de 1mm.

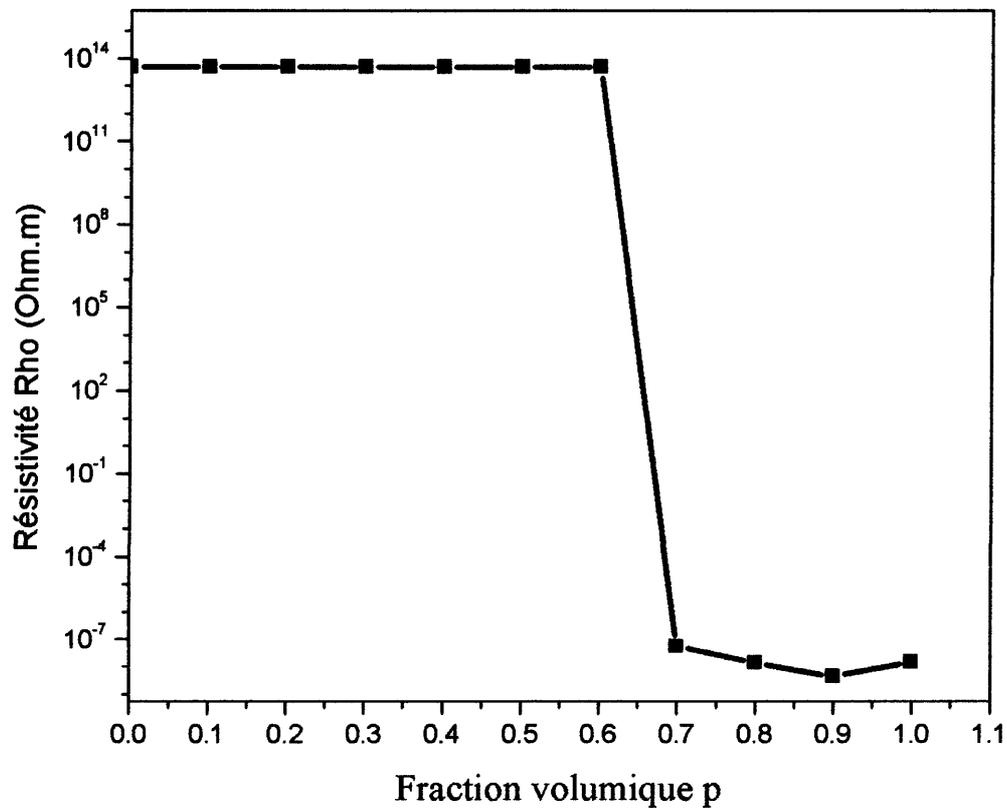


Figure. III. 2: Evolution de la résisivité effective ρ d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique p des inclusions conductrices ($\rho_{Ag} = 15. 10^{-9} \Omega.m$

$$\rho_{PVC} = 10^{16} \Omega.m).$$

Nous observons comme prévu une transition d'un état isolant à un état conducteur. En effet, la résistivité d'abord constante aux faibles concentrations diminue abruptement à une certaine valeur p_c appelée seuil de percolation.

la conductivité peut être déduite de la même courbe selon l'équation :

$$\sigma = \frac{1}{\rho} \dots \dots \dots (III.5)$$

Nous obtenons la figure (III. 3) représentant l'évolution de la conductivité en fonction de p pour les mêmes paramètres de la figure (III. 2) :

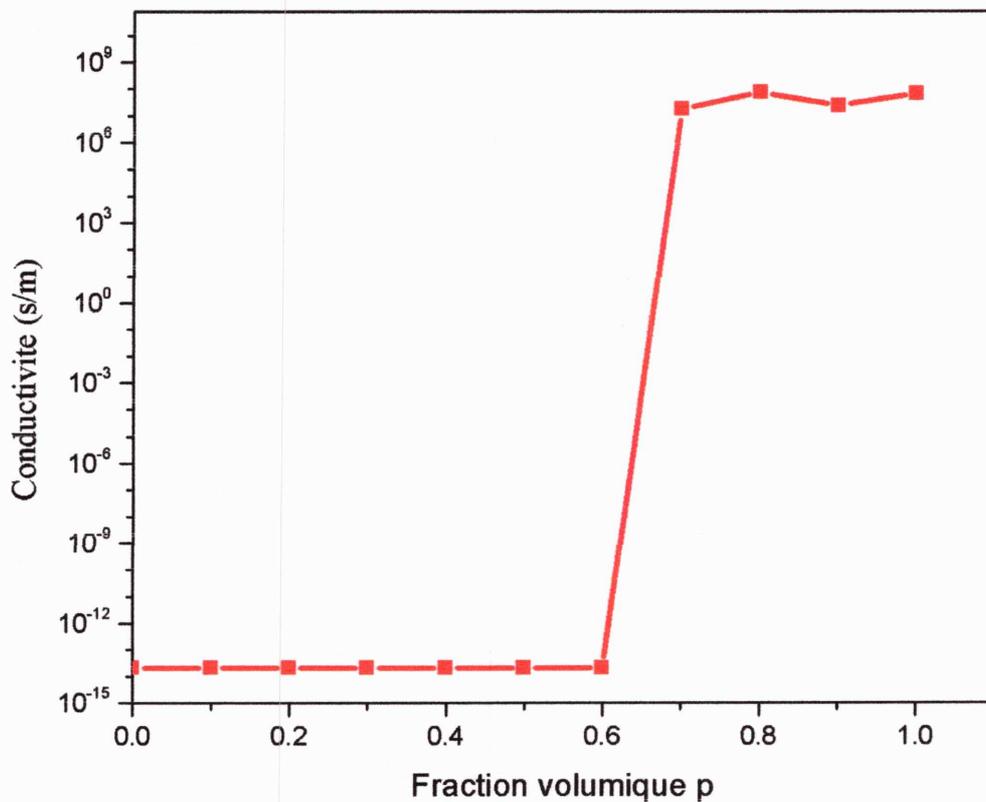


Figure III. 3: Evolution de la conductivite σ en fonction de la fraction volumique p des inclusion conductrices.

III. 5. 2. Effet de la taille de l'échantillon

La figure (III. 4) représente l'évolution de la résistivité effective d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique des inclusions pour différentes tailles de l'échantillon allant de 10 jusqu'à 50 mm.

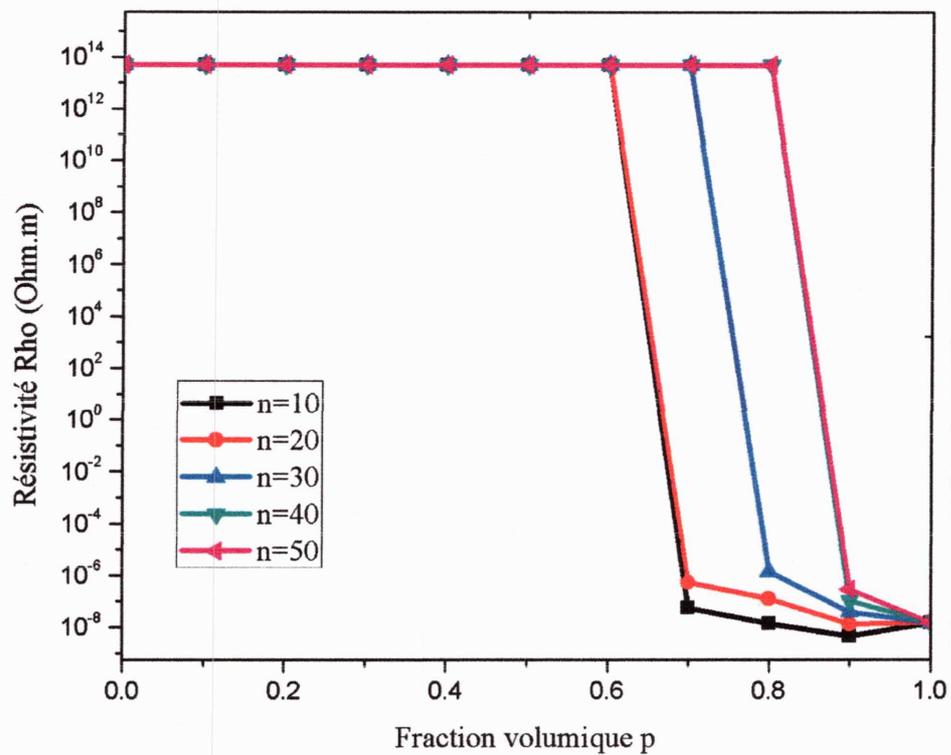


Figure III. 4: Evolution de la résistivité effective ρ d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique p des inclusions d'Ag pour différentes tailles de l'échantillon allant de 10 jusqu'à 50 mm (matrice PVC).

Nous remarquons que le seuil de percolation est décalé vers les fortes concentrations avec l'augmentation de la taille n de l'échantillon.

III. 5. 3. Effet de l'épaisseur de l'échantillon

La figure (III. 5) représente l'évolution de la résistivité effective d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique des inclusions pour différentes épaisseurs l' de l'échantillon variant de 10 à 50 mm, l'échantillon ayant une taille $N=50$ mm, $V=N^3$.

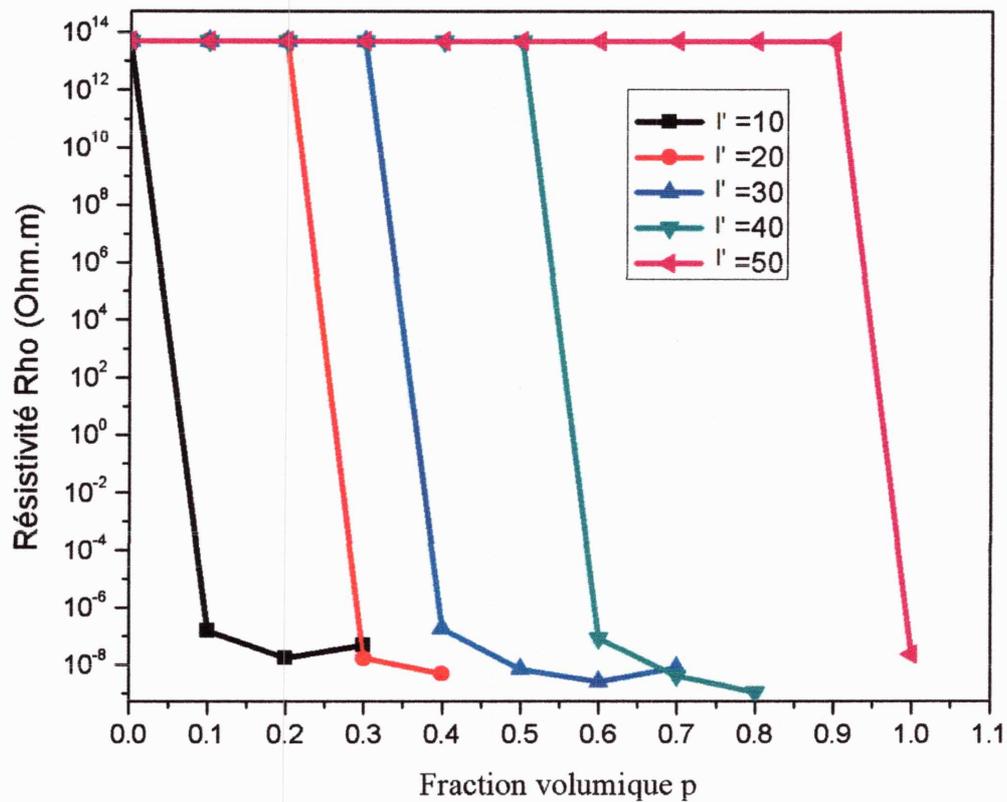


Figure III. 5: Evolution de la résistivité effective d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique des inclusions pour différentes épaisseurs l' de l'échantillon variant de 10 à 50 mm, l'échantillon ayant une taille $N=50$ mm, $V=N^3$.

Nous avons constaté que p_c diminue avec la diminution de l'épaisseur, ceci est expliqué par la réduction de la distance inter électrode (épaisseur) entraînant l'établissement de chemins conducteurs plus courts (à faible concentration).

Ce comportement est bien illustré par la figure (III. 6) représentant l'évolution de p_c en fonction de l'épaisseur l' .

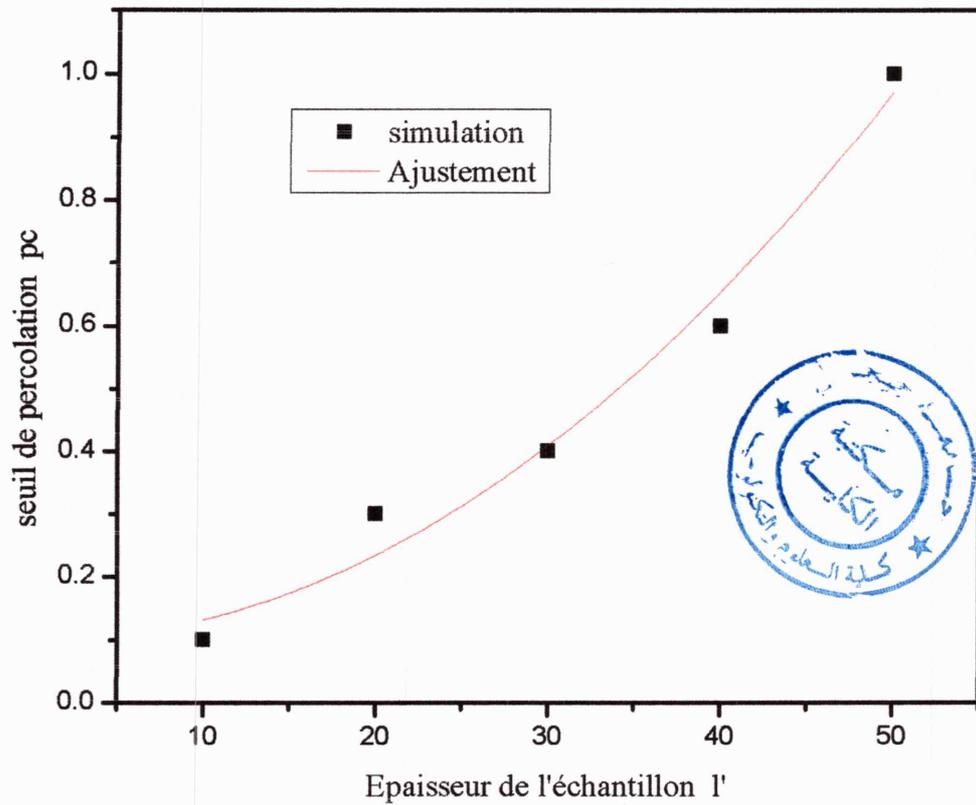


Figure III. 6: Evolution du seuil de percolation p_c d'un échantillon composite en fonction de l'épaisseur de l'échantillon allant de 10 jusqu'à 50 mm (matrice PVC).

III. 5. 4. Effet du type de la matrice

La figure (III. 7) représente l'évolution de la résistivité effective d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique des inclusions pour différents types de matrice.

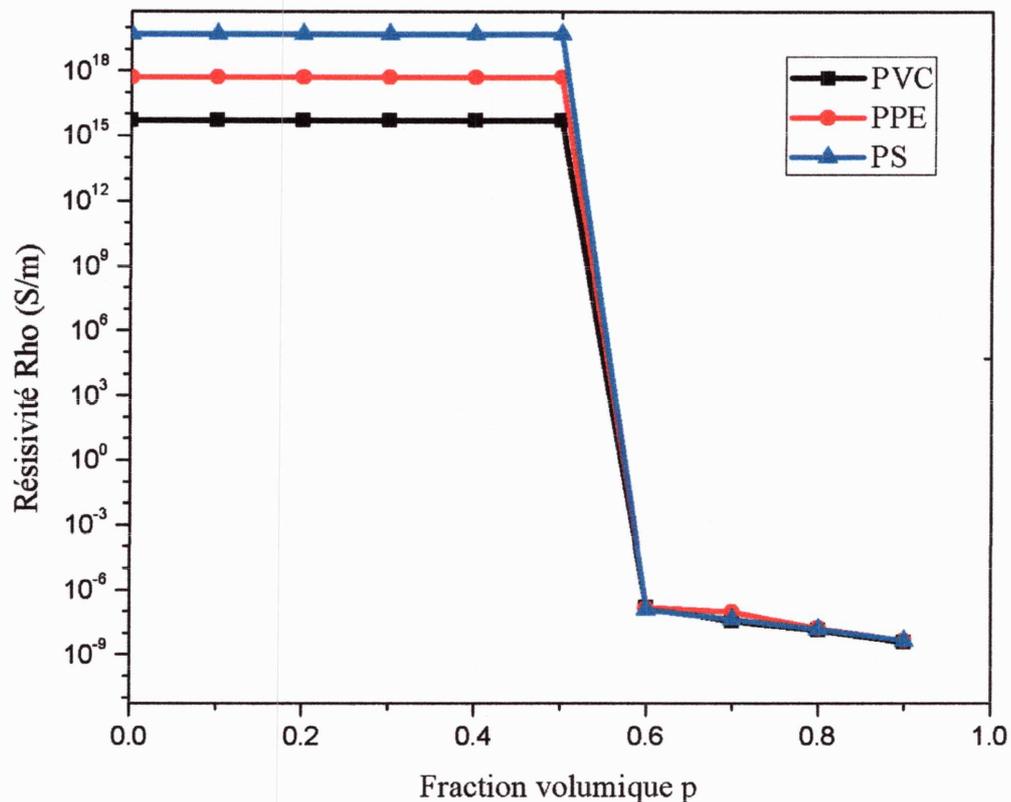


Figure III. 7 : Evolution de la résistivité effective ρ d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique p des inclusions conductrices d'Ag pour différents types de matrice ($N=10, l'=10$).

Nous avons utilisé dans la simulations les matrices suivantes:

Chlorure de polyvinyle (PVC) : $\rho_{PVC} = 10^{16} \Omega.m$

Polyphénylène éther (PPE) : $\rho_{PPE} = 10^{18} \Omega.m$

Polystyrène (PS) : $\rho_{PS} = 10^{20} \Omega.m$

Nous remarquons d'après la figure que la résistivité aux faibles concentrations ($p < p_c$) augmente avec l'augmentation de la résistivité de la matrice. Ceci est logique puisque imposé par les hypothèses de départ. En effet $\rho_{PS} > \rho_{PPE} > \rho_{PVC}$.

III. 5. 5. Effet du type des inclusions

La figure (III. 8) représente l'évolution de la résistivité effective d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique des inclusions pour différent types d'inclusions conductrices.

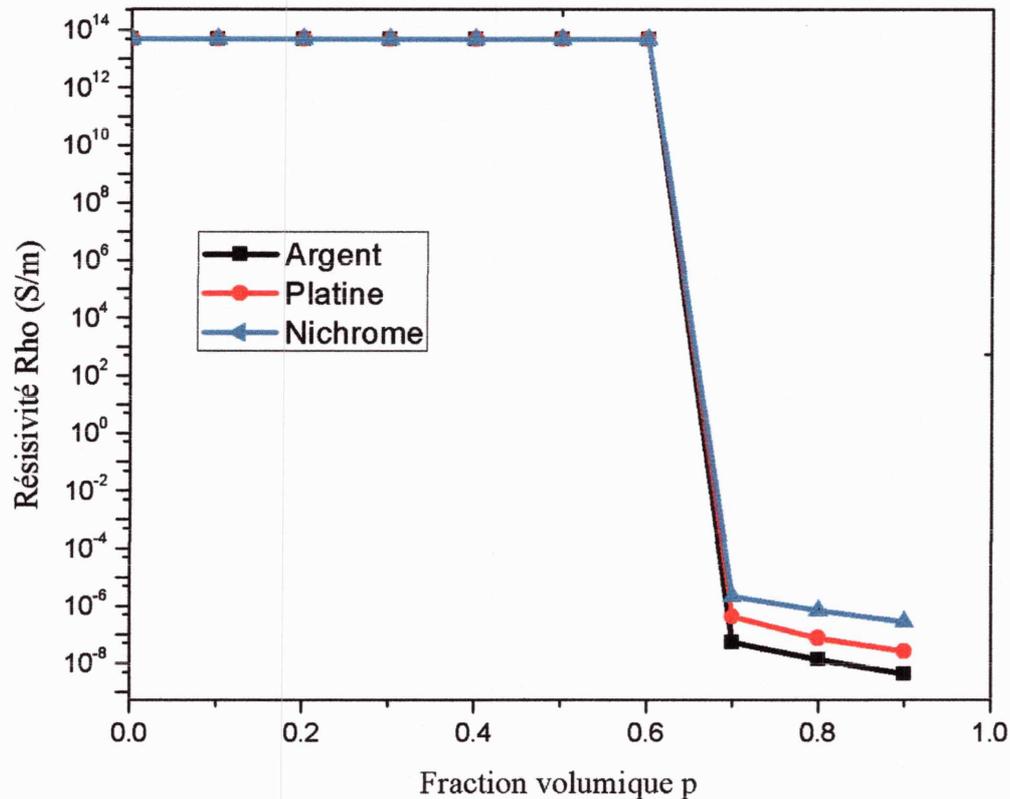


Figure III. 8: Evolution de la résistivité effective ρ d'un échantillon composite en fonction de la fraction volumique p d' inclusions conductrices de type différent (N=10, l'=10, matrice PVC).

Nous avons utilisé dans la simulations les inclusions suivantes :

L'Argent (Ag) : $\rho_{Ag} = 15.10^{-9} \Omega.m$

Le Platine (Pt) : $\rho_{PT} = 94.10^{-9} \Omega.m$

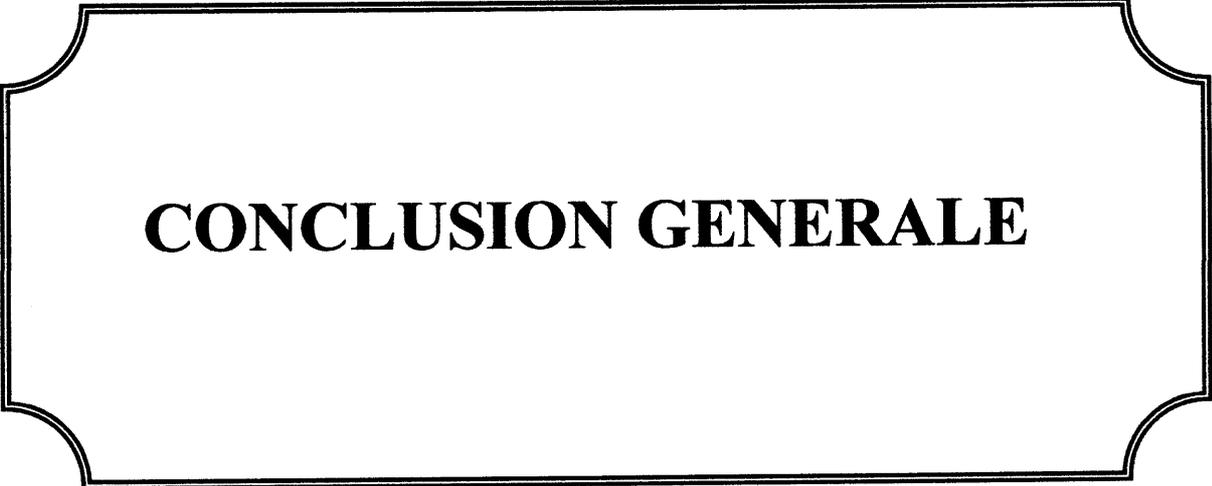
Le Nichrome (NiCr) : $1000.10^{-6} \Omega.m$

Ceci peut être expliqué par le fait que :

$$\rho_{Ag} < \rho_{Pt} < \rho_{NiCr}$$

III. 6. Conclusion

En conclusion, on peut dire que nous avons pu estimer la conductivité (résistivité) d'un matériau composite en utilisant un programme Matlab simulant le phénomène de percolation, nous avons pu vérifier l'effet de plusieurs paramètres pouvant contrôler cette grandeur tels que l'épaisseur de l'échantillon et le type des matériaux constituant le composite.



CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à la simulation du phénomène de percolation dans les matériaux composites constitués d'une phase conductrice incorporée dans une matrice isolante dans le but d'estimer la valeur de la résistivité effective du matériau résultant. L'étude est basée sur la répartition aléatoire des inclusions dans la matrice isolante suivie du test de percolation dans une direction choisie. A partir du nombre de chemins conducteurs trouvés on a pu remonter à la résistance équivalente des ces chemins conducteurs donnant accès à la valeur de la résistivité effective en utilisant les dimensions de l'échantillon. Ces calculs ont été effectués grâce à un programme Matlab. Nous avons étudié l'effet de plusieurs paramètres : Taille de l'échantillon, épaisseur, nature de la matrice et des inclusions....

Les résultats obtenus ont montré que :

- Le seuil de percolation verticale augmente avec l'augmentation de la taille des échantillons.
- Ce dernier peut être réduit en réduisant l'épaisseur de l'échantillon. Les films minces s'avèrent donc plus intéressants.
- La conductivité est contrôlée par celle de la matrice à faible taux de chargement et par celle des inclusions conductrices à plus fortes concentrations.

Références bibliographiques

- [1] M KARRAY, « Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des matériaux composites par méthode holographique numérique 3Det analyse diélectrique » Thèse de Doctorat, Université du Maine, 2012.
- [2] D.Gay, « Matériaux Composites », Edition Hermès, paris, 1987.
- [3] F. BOUROUIS, « Etude du Comportement mécanique De Structures Sandwiches A Différents », Université Mentouri-Constantine, 2001.
- [4] P. Bourban , E. Carlsson, L. Mercier et J.P MANSON. « Matériaux composites à matrice organique », universitaires romandes, Constituants, 2004.
- [5] C.A NAUDIN, CLAUDE et C. CLOZZA, « Plastiques et Composites, Les charges », Technique d'ingénieur, traité d'électricité, 1987.
- [6] R. YOUNES, « Matériaux composites ». Master Mécanique 3M, 2005.
- [7] M. EGANA, « Introduction aux matériaux composites sur abaqus, analyse d'un planche de kitesurf ». 4^{eme} année GM.
- [8] S. SAHRI, « Etude du comportement mécanique d'un matériau composite thermoplastique (pp)/verre : effet de différents milieux », 2012.
- [9] C. A. Amarnath, S. Palaniappan, P. Rannou et Prou A. J. Appl. Polym Sci, 103:1113, 2007.
- [10] A. PUD, N. OGURTSPV, A KORZHENKO et G. SHAPOVAL, « prog. Polm », 2003.
- [11] E. PERAUD, A. TADOLDI, et J.M. SAGE, « Use of polyimide based powder composition for the coating of metal substrates », European Patent office edition, 2001.
- [12] A. PRON, Y.F. NICOLOU, M. NEHTSCHEIN, et F. GENOUD. « Composition for producing a conductive composite material containing a polyaniline, and resulting composite material », European patent office edition, 1998.
- [13] P.S. NEELAKANTA, « Handbook of Electromagnetic Materials. Monolithic and Composite Versions and their Applications, composite dielectric materials with a discrete conducting phase », University, Boca Raton, Florida Atlantic, p. 163- 174, 1995.
- [14] A. PRIOU, « Techniques d'Ingénieur AF3371 », 1999.
- [15] C. PECHARROMAIN, J. E. IGLESIAS, Phys. Rev. B 49 (11) (1994), 7137.

- [16] A. MDARHRI, Thèse de doctorat, N° d'ordre : 3372, Université Bordeaux I, 2007.
- [17] Mclachlan D. S., J. Phys. C: Solid State Phys. C21 (1988), 1521.
- [18] E. Guyon, « La physique de la matière hétérogène », Pour la Science, 1982.
- [19] D. HULL, « an introduction to composites materials » cambridge solid state series, cambridge university press, cambridge, 1992.
- [20] F. ARNAUD, « Mesure du bruit sur un matériau composite », Thèse de doctorat. Université de Joseph Fourier-Grenoble, 2003.
- [21] M. A. TIMAOUI, « Caractérisation électrique Des contacts entre grains des Composites Par La Spectroscopie Diélectrique », 2011.
- [22] S. PAJOT, « Percolation et économie », thèse de doctorat, 2001.
- [23] F. DARBOUX, « Modélisations expérimentale du ruissellement », thèse de doctorat. Université de Rennes 1, 1999.
- [24] P.G.de Gennes, « La percolation :un concept unificateur »,La Recherche N°/2, 1975.
- [25] R. COELHO, B. ALDENIZE, « les diélectriques :propriétés diélectriques des matériaux isolants », Ed. Hermès1993.
- [26] B.HILCZER, elektrety I piezopolimery, pwn, warszawa,1992
- [27] D. STAUFFER, A. AHARONY, « Introduction to percolation theory » ,2nd ed. (Taylor & Francis, London), 1992.
- [28] A BUNDE, S HAVLIN, « percolation », in Bunde A,Havlin S., Fractals and Disordered Systems, Berlin, Springer-Verlag, 1991.
- [29] JR. Cler, G. Giraud, J. Roussenq, R. Blanc, Carton. JR, E. Guyon, H. Ottavi , « la percolation modèles, simulations analogiques et numériques », 1983.
- [30] G. GRIMMETT, « percolation», université de New York, springer-verlag, 1989.

Résumé :

Pour obtenir des matériaux conducteurs à base de polymères, il est nécessaire de mélanger ces derniers avec des particules conductrices. Les matériaux composites conducteurs possèdent de nombreuses applications dans le domaine de l'électronique ou des transports. Ces matériaux se caractérisent par une conductivité électrique proche de celle des métaux, tout en ayant une masse volumique plus faible, et des propriétés de transport de chaleur améliorées par rapport à celles des matières plastiques. Notre travail est une contribution à l'étude de la conductivité de ces mélanges en se basant sur le phénomène de percolation afin de déterminer le seuil de percolation et d'estimer la conductivité (résistivité) de ces matériaux composites. Pour cela nous avons utilisé un programme simulant la percolation dans un échantillon à trois dimensions. Les résultats obtenus ont montré que le seuil de percolation dépendait de l'épaisseur de l'échantillon et que la valeur de la conductivité est fortement influencée par celles des phases constituant le matériau composite.

Mots clés: Percolation, résistivité, composite, simulation.