



Science Arts & Métiers (SAM)

is an open access repository that collects the work of Arts et Métiers Institute of Technology researchers and makes it freely available over the web where possible.

This is an author-deposited version published in: <https://sam.ensam.eu>
Handle ID: <http://hdl.handle.net/10985/10917>



This document is available under CC BY license

To cite this version :

Sean Michael GETTINGS, William TIMBURY, Anna DMOCHOWSKA, Riddhi SHARMA, Rebecca MCGONIGLE, Lewis E. MACKENZIE, Guillaume MIQUELARD-GARNIER, Nora BOURBIA - Polyethylene terephthalate (PET) micro- and nanoplastic particles affect the mitochondrial efficiency of human brain vascular pericytes without inducing oxidative stress - NanoImpact - Vol. 34, p.100508 - 2024

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository

Administrator : scienceouverte@ensam.eu



Modélisation multi-échelle du comportement électrique de nano-composites Cu-Nb

T. Gu^{1,2}, E. Herve-Luanco², H. Proudhon², L. Thilly³, J.-B. Dubois³,
F. Lecouturier⁴, O. Castelnau¹ et S. Forest²

Résumé – Les fils composites nanostructurés et architecturés cuivre-niobium, qui sont de bons candidats pour la génération de champs magnétiques intenses, allient une limite d'élasticité élevée et une excellente conductivité électrique. Ils sont élaborés par co-déformation d'un assemblage composite Cu-Nb. La microstructure, multi-échelle, est formée de 85^3 motifs élémentaires de Cu-Nb de taille caractéristique nanométrique. Afin d'étudier le lien entre la conductivité électrique effective et la microstructure, deux méthodes d'homogénéisation sont appliquées : l'une, en champs moyens (modèle auto-cohérent généralisé), dans laquelle une microstructure formée de motifs co-cylindriques répartis aléatoirement est considérée, et l'autre, en champs complets (éléments finis), dans laquelle l'aspect périodique de la microstructure expérimentale est pris en compte. Les effets de la taille des constituants élémentaires (nm), de la température, ainsi que de la densité de dislocations, sur la conductivité locale sont considérés. Le caractère multi-échelle du matériau est pris en compte grâce à un processus itératif. Les conductivités effectives longitudinale et transversale obtenues avec les deux méthodes sont en excellent accord, montrant un moindre effet de la distribution des fibres sur ces propriétés. Ces résultats reproduisent également les données expérimentales disponibles.

Mots clés : Composites architecturés / matériaux polycristallins / méthodes d'homogénéisation / modélisation multi-échelle / conductivité électrique

Abstract – Multiscale modeling of the electrical behavior of Cu-Nb nano-composites. Nanostructured and architected copper niobium composite wires are very good candidates for the generation of very high magnetic fields as they combine both high strength and high electrical conductivity. They are fabricated by co-deformation of a Cu-Nb composite assembly. A multiscale microstructure formed by 85^3 Cu-Nb elementary patterns with dimensions of the order of nanometers, is obtained. In order to investigate the link between the effective electrical conductivity and the wire microstructure, two homogenization methods are applied: first, using a mean field theory (generalized self-consistent model) in which a microstructure formed by co-cylindrical long fibers with a random distribution is considered, and second a full field method (Finite Elements) in which the periodic character of the experimental microstructure is taken into account. The size effect of components (nm), temperature, and dislocation density are taken into account into the definition of the local conductivity. The multiscale character of the material is taken into consideration through an iterative process. The longitudinal and transverse effective conductivities obtained by both methods perfectly match with each other, showing the limited influence of the effect of fiber distribution for this behavior. Results also compare well with the available experimental data.

Key words: Multiscale composites / polycrystalline materials / homogenization methods / multiscale modeling / electrical conductivity

¹ Laboratoire PIMM, CNRS UMR 8006, Arts & Métiers ParisTech, 151 Bd de l'hôpital, 75013 Paris, France
Tang.GU@ensam.eu

² Centre des matériaux, CNRS UMR 7633, Mines ParisTech, BP 87, 91003 Evry Cedex, France

³ Institut Pprime, UPR 3346, CNRS, University of Poitiers, ISAE-ENSMA, SP2MI, Boulevard Marie et Pierre Curie, BP 30179, 86962 Futuroscope Chasseneuil Cedex, France

⁴ Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, UPR 3228 CNRS-UPS-INSA-UJF, 143 avenue de Rangueil, 31400 Toulouse, France

1 Introduction

Les travaux présentés ici concernent l'étude de fils conducteurs composites nanostructurés à base de cuivre-niobium (Cu-Nb), qui sont de bons candidats pour la réalisation de bobines permettant la génération des champs magnétiques très intenses (>90 T). Ces champs magnétiques sont devenus un outil expérimental et industriel essentiel [1–3]. Pour les produire, les fils conducteurs constituant les bobines doivent allier une limite d'élasticité et une conductivité électrique élevées [4]. Dans [5], un conducteur présentant une contrainte maximale de 1.9 GPa à 77 K a été obtenu, pour une conductivité de $1.72 \mu\Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$.

Les conducteurs nano-composites continus Cu-Nb sont élaborés par un procédé de déformation plastique sévère, basé sur des cycles successifs d'extrusion à chaud, d'étirage à froid et d'empilements [4]. Comme illustré dans la figure 1, ce procédé d'élaboration conduit à la formation d'une structure multi-échelle complexe de la matrice de cuivre et la nanostructuration des renforts de niobium. Il en résulte une nanostructuration du matériau composite, qui a un effet important sur les propriétés du conducteur, lui permettant d'atteindre les propriétés recherchées.

La figure 1 présente la microstructure multi-échelle des fils Cu-Nb (microstructure appelée "co-cylindriques" dans [7]) : à l'échelle du Zoom 1, les nanotubes de niobium (Nb-t) sont séparés par de fins canaux de cuivre (Cu-0), et ils contiennent un filament de cuivre (Cu-f). On définit l'échelle effective du Zoom 1 par l'assemblage de 85 de ces motifs élémentaires. Sur le Zoom 2, des canaux de Cu (Cu-1) entourent 85 motifs élémentaires décrits dans le Zoom 1. Au niveau du Zoom 3, le fil est constitué de 85^3 motifs de Cu-f/Nb-t/Cu-0 de taille caractéristique nanométrique, et séparés par les canaux de cuivre Cu-1, Cu-2. Le Zoom 4 correspond à la microstructure du Zoom 3 entourée d'un cylindre de Cu-3, reproduisant ainsi la structure expérimentale de la dernière étape d'élaboration (échelle macroscopique). En raison du processus d'élaboration itératif, tous les nanotubes de Nb ont subi la même déformation, et présentent donc des microstructures et des tailles caractéristiques similaires. Concernant le Cu, les régions Cu-f et Cu-0 sont introduites lors de la toute première étape d'élaboration, alors que Cu-1, Cu-2, et Cu-3 sont introduits successivement ; les microstructures et les tailles caractéristiques de ces constituants sont donc différentes (voir le Tab. 1).

Les études réalisées précédemment sur ces matériaux concernent le procédé d'élaboration [8, 9], la caractérisation des matériaux [10, 11], la stabilité thermique [12], la modélisation atomistique des interfaces [13] et les propriétés mécaniques [14, 15]. En outre, la conductivité électrique a été étudiée expérimentalement et théoriquement par Thilly [5] et Dubois [7] dans la direction longitudinale, i.e. selon l'axe du fil.

Dans ce travail, nous présentons une modélisation multi-échelle de la conductivité électrique effective du fil, en tenant compte de son aspect anisotrope. Le modèle Auto-Cohérent Généralisé (ACG, Sect. 2.1), initialement

développé pour prédire le comportement élastique effectif [16–18], puis modifié par Joannes et Hervé-Luanco [19] pour les phénomènes de diffusion dans les composites à fibres longues n -phases isotropes transverses, est appliqué ici au cas de la conductivité électrique. Ce modèle considère une répartition aléatoire des motifs élémentaires. Un second modèle, basé sur la méthode des Eléments Finis et prenant en compte le caractère périodique de la microstructure expérimentale (HP dans Sect. 2.2), mais plus lourd au niveau numérique, est également appliqué [20–22]. Dans [5], les effets de la taille des constituants (nm), de la température, et de la densité de dislocations sur la conductivité locale sont pris en compte à l'aide de la loi de Dingle (Sect. 3.1). Les résultats théoriques et numériques obtenus, dans lesquels le caractère multi-échelle du matériau est pris en compte grâce à un processus itératif (Sect. 3.2), sont comparés à des mesures expérimentales (Sect. 4).

2 Modélisation de la conductivité électrique effective des composites

2.1 Modèle auto-cohérent généralisé

La figure 1 présente la disposition des fils de nanocomposite Cu-Nb à différents échelles. Sur le Zoom 1, les fils co-cylindriques apparaissent avec trois couches : Cu-f/Nb-t/Cu-0. Le modèle Auto-Cohérent Généralisé (ACG) [19] considère qu'ils sont distribués aléatoirement. Ce schéma est développé de la manière suivante : d'abord le problème élémentaire d'une inclusion constituée de n phases co-cylindriques dans une matrice homogène, défini sur la figure 2, est résolu ; puis la matrice est remplacée par le Milieu Homogène Équivalent (MHE), dont la conductivité effective $\bar{\sigma}$ sera déterminée par une condition d'auto-cohérence (Fig. 3a).

2.1.1 Problème cylindrique n -phase

Nous commençons par présenter le problème élémentaire d'une inclusion dans une matrice homogène (problème cylindrique n -phase). Une inclusion cylindrique de n couches est noyée dans une matrice infinie (phase $n + 1$), chaque phase étant supposée homogène et isotrope transverse (l'axe de symétrie est ici confondu avec la direction longitudinale des fibres longues). Des systèmes de coordonnées cartésiennes (x_1, x_2, x_3) et cylindriques (r, θ, z) , de même origine, sont utilisés dans cette étude. L'axe z est ici identique à l'axe x_1 , et il est aligné avec la direction longitudinale des fibres longues (Fig. 2).

Comme dans Hervé et Zaoui [18], sur la figure 2, la phase i se situe dans la couronne limitée par les deux cylindres concentriques de rayon R_{i-1} et R_i ($i \in [1, n + 1]$ avec $R_0 = 0$, $R_{n+1} \rightarrow \infty$). Dans la phase i , $\sigma_L^{(i)}$ et $\sigma_T^{(i)}$ sont respectivement les conductivités longitudinale et

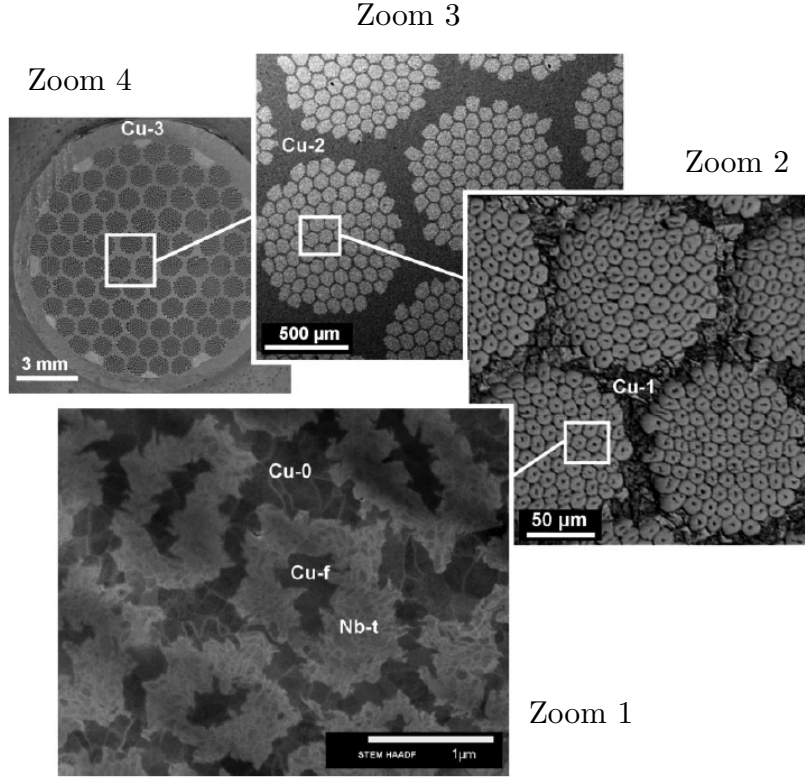


Fig. 1. Microstructure multi-échelle des conducteurs nano-composites Cu-Nb. Zoom 4, 3 et 2 : observations par Microscopie Électronique à Balayage (MEB), Zoom 1 : observation par Microscopie Électronique en Transmission (MET) [6, 7].

Fig. 1. Multi-scale microstructure of Cu-Nb nano-composite conductor. Zoom 4, 3 and 2: micrographs obtained by Scanning Electron Microscopy (SEM), Zoom 1: obtained by Transmission Electron Microscopy (TEM) [6, 7].

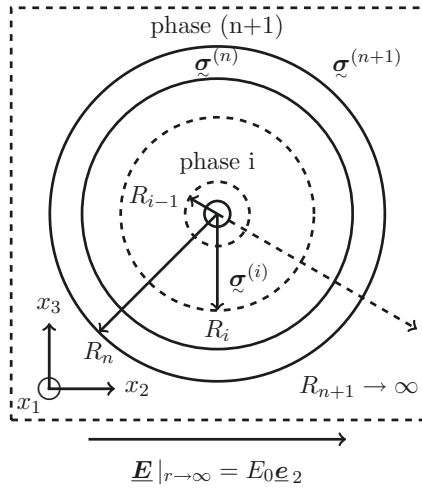


Fig. 2. Problème cylindrique n -phase (conduction électrique transversale).

Fig. 2. n -layered cylindrical problem (transverse electrical conduction).

transversale. On écrit la conductivité isotrope transversale sous la forme du tenseur d'ordre deux suivant :

$$\underline{\sigma}^{(i)} = \sigma_T^{(i)} (\underline{e}_r \otimes \underline{e}_r + \underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_\theta) + \sigma_L^{(i)} \underline{e}_1 \otimes \underline{e}_1,$$

Tableau 1. Dimensions théoriques $\delta^{(i)}$ dans le cas des diamètres $d = 0.506$ et 2.064 mm, avec les conductivités locales $\sigma^{(i)}$ ($\mu\Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$) à 293 K et la fraction volumique $f^{(i)}$ de chaque phase i .

Table 1. Theoretical dimensions $\delta^{(i)}$ in the case of diameters $d = 0.506$ and 2.064 mm, with the corresponding local conductivity $\sigma^{(i)}$ ($\mu\Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$) at 293 K and volume fraction $f^{(i)}$ of each phase i .

phase i	$f^{(i)}$	$d = 0.506$ mm $\delta^{(i)}$	$\sigma^{(i)}$	$d = 2.064$ mm $\delta^{(i)}$	$\sigma^{(i)}$
Nb-t	23.8%	83 nm	0.057	338 nm	0.060
Cu-f	4.5%	110 nm	0.424	450 nm	0.533
Cu-0	16.5%	71 nm	0.372	289 nm	0.513
Cu-1	13.7%	492 nm	0.536	2006 nm	0.560
Cu-2	18.0%	5.58 μm	0.565	22.8 μm	0.568
Cu-3	23.4%	31.6 μm	0.568	129 μm	0.568
Cu massif	∞	∞	0.568	∞	0.568
Nb massif	∞	∞	0.060	∞	0.060

avec \otimes le produit tensoriel. La loi de comportement dans la phase i obéit à la loi d'Ohm :

$$\underline{j}^{(i)} = -\underline{\sigma}^{(i)} \cdot \nabla \Phi^{(i)} = \underline{\sigma}^{(i)} \underline{E}^{(i)} \quad (1)$$

où Φ , \underline{j} et $\underline{E}^{(i)}$ représentent respectivement le potentiel électrique (V), la densité de courant électrique (A m^{-2})

et le champ électrique ($V m^{-1}$). On fait l'hypothèse d'un régime quasi-statique, d'où :

$$\operatorname{div}(\underline{j}) = 0. \quad (2)$$

À partir des équations (1) et (2), on obtient l'équation d'équilibre de $\Phi^{(i)}$ dans la phase i :

$$-\sigma_T^{(i)} \frac{\partial^2 \Phi^{(i)}}{\partial^2 r} - \frac{\sigma_T^{(i)}}{r} \left[\frac{\partial^2 \Phi^{(i)}}{r \partial \theta^2} + \frac{\partial \Phi^{(i)}}{\partial r} \right] - \sigma_L^{(i)} \frac{\partial^2 \Phi^{(i)}}{\partial x_1^2} = 0. \quad (3)$$

Nous nous intéressons dans un premier temps à la conduction électrique *transversale*. Pour cela, un champ électrique à distance est appliqué sur la surface de l'échantillon ($r = R_{n+1}$ avec $r \rightarrow \infty$) selon la direction transversale x_2 (voir Fig. 2)

$$\underline{E}|_{r \rightarrow \infty} = E_0 \underline{e}_2. \quad (4)$$

Le potentiel électrique solution dans la phase i qui satisfait à la fois l'équation d'équilibre (3) et la condition aux limites (4) est proposé sous la forme :

$$\Phi^{(i)}(r, \theta) = \left(A_i r + B_i \frac{R_{i-1}^2}{r} \right) \cos \theta \quad (5)$$

où A_i and B_i sont les constantes à déterminer. Afin d'éviter un problème de singularité en $r = 0$, la valeur $B_1 = 0$ est choisie, sans perte de généralité. La densité de courant électrique correspondante selon la direction normale \underline{r} est alors donnée par :

$$j_r^{(i)}(r, \theta) = -\sigma_T^{(i)} \left(A_i - B_i \frac{R_{i-1}^2}{r^2} \right) \cos \theta. \quad (6)$$

Les interfaces ($r = R_i$) étant supposées parfaites, le potentiel électrique Φ et la densité de courant normale j_r doivent vérifier la condition de continuité à l'interface :

$$\begin{cases} \Phi^{(i)}(R_i, \theta) = \Phi^{(i+1)}(R_i, \theta) \\ j_r^{(i)}(R_i, \theta) = j_r^{(i+1)}(R_i, \theta). \end{cases} \quad (7)$$

Pour déterminer la valeur des constantes A_i et B_i du problème cylindrique n -phase, Hervé et Zaoui [17] ont proposé d'utiliser les "matrices de transfert" \mathbf{J}_i sur les interfaces ($r = R_i$). La continuité en $r = R_i$ devient alors :

$$\mathbf{J}_i(R_i) \cdot \mathbf{W}_i = \mathbf{J}_{i+1}(R_i) \cdot \mathbf{W}_{i+1} \quad (8)$$

avec \mathbf{W}_i désignant $(A_i \ B_i)^T$, et \mathbf{J}_i est la matrice suivante :

$$\mathbf{J}_i(r) = \begin{pmatrix} r & \frac{R_{i-1}^2}{r} \\ -\sigma_T^{(i)} & \sigma_T^{(i)} \frac{R_{i-1}^2}{r^2} \end{pmatrix}. \quad (9)$$

Définissons les matrices \mathbf{N} et \mathbf{Q} à partir des matrices \mathbf{J}_i :

$$\mathbf{N}^{(i)} = \mathbf{J}_{i+1}^{-1}(R_i) \cdot \mathbf{J}_i(R_i) \quad \text{et} \quad \mathbf{Q}^{(k)} = \prod_{i=k}^1 \mathbf{N}^{(i)}.$$

L'équation (8) est réécrite sous la forme :

$$\mathbf{W}_{i+1} = \mathbf{N}^{(i)} \cdot \mathbf{W}_i, \quad \mathbf{W}_{k+1} = \mathbf{Q}^{(k)} \mathbf{W}_1. \quad (10)$$

Tous les coefficients A_k, B_k ($k \in [1, n]$) peuvent alors être calculés :

$$\begin{cases} A_k = \frac{Q_{11}^{(k-1)}}{Q_{11}^{(n)}} A_{n+1} \\ B_k = \frac{Q_{21}^{(k-1)}}{Q_{11}^{(n)}} A_{n+1} \end{cases} \quad (11)$$

avec $A_{n+1} = -E_0$. La densité de courant électrique $\underline{j}^{(i)}$ et le potentiel $\Phi^{(i)}$ sont maintenant déterminés dans toutes les phases i ($i \in [1, n]$).

Dans le cas de la conduction électrique *longitudinale*, l'équation d'équilibre (3) se met sous la forme suivante dans chaque phase :

$$\Phi^{(i)} = -E_0 x_1, \quad (12)$$

pour des conditions aux limites homogènes au contour : $\underline{j}|_{r \rightarrow \infty} \cdot \underline{e}_r = 0$ sur la surface latérale du cylindre et $\Phi = -E_0 x_1$ sur les deux sections extrêmes, avec E_0 un champ électrique constant. On obtient alors une densité de courant homogène par phase, contrairement au cas transversal.

2.1.2 Schéma autocohérent généralisé

Afin de déterminer la conductivité effective $\tilde{\sigma}$ du composite Cu-Nb, le problème cylindrique n -phase résolu précédemment est utilisé avec une phase $(n+1)$ inconnue représentant le MHE, et une condition d'auto-cohérence (qui peut être une condition énergétique telle que celle utilisée par Christensen et Lo [23] ou une condition portant sur les moyennes de champs [24], ces deux conditions étant équivalentes). Cette démarche a été suivie par Joannes et Hervé-Luanco [19] et conduit, dans le cas de la conductivité *transversale*, à $B_{n+1} = 0$ et, par voie de conséquence à $Q_{12}^{(n)} = 0$, entraînant :

$$\tilde{\sigma}_T = \sigma_T^{(n+1)} = \frac{\sigma_T^{(n)} [R_n^2 Q_{11}^{(n-1)} - R_{n-1}^2 Q_{21}^{(n-1)}]}{R_n^2 Q_{11}^{(n-1)} + R_{n-1}^2 Q_{21}^{(n-1)}}. \quad (13)$$

Dans le cas de la conductivité *longitudinale*, la condition d'auto-cohérence conduit à :

$$\tilde{\sigma}_L = \sum f^{(i)} \sigma_L^{(i)} \quad (14)$$

avec $f^{(i)}$ la fraction volumique de la phase i . On remarquera que cette dernière expression n'est autre que la loi des mélanges sur les conductivités. Il s'agit en fait de la solution exacte pour toutes les microstructures formées de fils parallèles, quel que soit l'assemblage de ces fils.

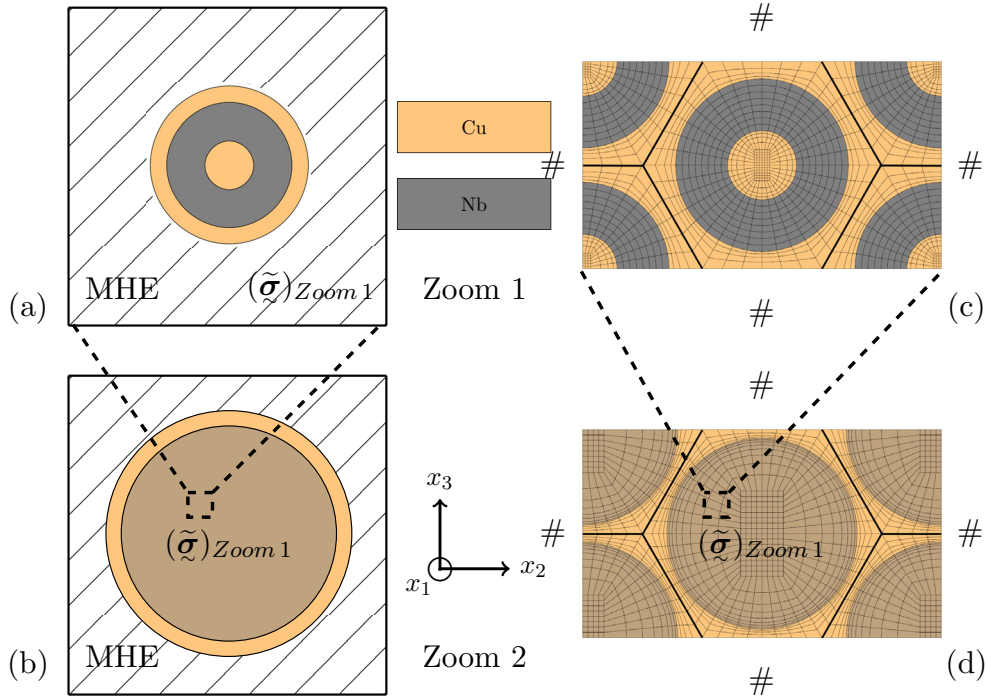


Fig. 3. Modélisation multi-échelle de la conductivité effective du Zoom 1 (a et c) au Zoom 2 (b et d). (a, b) : processus itératif par modèle Auto-Cohérent Généralisé (ACG); (c, d) : Homogénéisation Périodique (HP) avec les maillages de la méthode des éléments finis (MEF).

Fig. 3. Multi-scale modeling of the effective conductivity from the Zoom 1 (a and c) to the Zoom 2 (b and d). (a, b): the iterative process by the Generalized Self-Consistent model (GSC); (c, d): Periodic Homogenization (PH) with the finite element method (FEM).

2.2 Homogénéisation périodique

Le modèle analytique ACG présenté ci-dessus suppose que les fibres longues sont distribuées aléatoirement (Fig. 3a). Afin de tenir compte de la distribution quasi-périodique observée expérimentalement (Fig. 1), résultant du processus d'élaboration, et d'étudier l'effet de cette distribution particulière, le problème périodique a été résolu. Pour cela, nous avons considéré une cellule élémentaire soumise à des conditions aux limites périodiques, et le problème (que nous appelons HP pour Homogénéisation Périodique) a été résolu par la méthode des éléments finis [20–22]. La périodicité de la cellule de base et des conditions aux limites permettent de déterminer la conductivité effective $\tilde{\sigma}$ du MHE correspondant, i.e. infini et périodique.

La cellule de base considérée dans le modèle HP, ainsi que le maillage utilisé (éléments quadratiques à 20 nœuds, c3d20), sont indiqués sur la figure 3c. La cellule de base contient toute l'information morphologique du Volume Élémentaire Représentatif (VER). Elle contient deux fibres longues ($1 + 4 \times 1/4$ fibres) disposées sur un réseau hexagonal, et elle représente la microstructure expérimentale (idéalisée) des nano-composites Cu-Nb sur le Zoom 1. Ces calculs HP sont basés sur des conditions aux limites et des microstructures périodiques. Or la microstructure réelle ne l'est pas, notamment car chaque Zoom ne contient finalement qu'un nombre limité de

motifs élémentaires (85). Nous avons vérifié à l'aide de calculs EF sur de plus grandes structures avec conditions aux limites non périodiques que cette hypothèse de périodicité ne modifiait guère les résultats.

Sous conditions aux limites périodiques, le potentiel Φ dans le volume V s'écrit de la manière suivante :

$$\Phi = \langle \nabla \Phi \rangle \cdot \underline{x} + t, \quad \forall \underline{x} \in V \quad (15)$$

où $\langle \underline{a} \rangle$ désigne la moyenne volumique :

$$\langle \underline{a} \rangle = \frac{1}{V} \int_V \underline{a} dV. \quad (16)$$

Dans l'équation (15), t est la fluctuation périodique, i.e. deux points homologues sur des faces opposées de V ont la même valeur de t . En outre, le scalaire $\underline{j} \cdot \underline{n}$ prend des valeurs opposées en deux points homologues (\underline{n} étant le vecteur normal de ∂V en \underline{x}).

Afin de déterminer les deux composantes de la conductivité électrique, on applique successivement, comme conditions aux limites sur V , le champ électrique \underline{E} suivant : $\langle \nabla \Phi \rangle = E_0 \underline{e}_1$ pour la conductivité *longitudinale*, et $\langle \nabla \Phi \rangle = E_0 \underline{e}_2$ (ou $E_0 \underline{e}_3$) pour la conductivité *transversale*. Puis, la densité de courant moyenne $\langle \underline{j} \rangle$ est déterminée par homogénéisation numérique, afin d'obtenir la conductivité effective HP à partir de la condition suivante :

$$\langle \nabla \Phi \rangle = \tilde{\sigma} \cdot \langle \underline{j} \rangle. \quad (17)$$

3 Application à la conductivité effective des nano-composites Cu-Nb

3.1 Comportement local

Les phases Cu et Nb évoquées ci-dessus sont en réalité elles-mêmes constituées de grains nanométriques (polycristaux). Cependant, ces deux métaux étant de structure cristalline cubique, la conductivité à l'échelle des grains est isotrope (Sivardière [25]), et donc, du point de vue de la conductivité, les phases polycristallines de Cu et Nb peuvent être considérées comme homogènes, les propriétés effectives de ces polycristaux étant identiques à celle des grains constitutifs. Ainsi, les conductivités longitudinale $\sigma_L^{(i)}$ et transversale $\sigma_T^{(i)}$ sont égales, pour Cu et pour Nb.

En outre, Thilly [5] a montré que la température T , la densité de dislocations β et l'effet de taille (largeur des canaux) peuvent avoir un effet significatif sur la conductivité électrique locale des nano-composites Cu-Nb. La conductivité d'échantillons massifs de Cu et de Nb a été mesurée, en fonction de T et β , dans [5]. Il a ainsi été montré que, à température ambiante (293 K), dans le cas des conducteurs fortement écrouis de diamètre $d \in (0.5, 2.5)$ mm, la densité de dislocations β influence peu la conductivité. Cela correspond au cas de fortes densités de dislocation, probablement saturantes, estimées à $\beta \sim 10^{16} \text{ m}^{-2}$ dans les canaux larges, et de l'ordre de 10^{12} à 10^{13} m^{-2} dans les canaux fins. Pour ces échantillons massifs, les valeurs de conductivité sont, à 293 K : $\sigma_{\text{massif}} = 0.568 \mu\Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ pour Cu, et $0.060 \mu\Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ pour Nb (voir aussi le Tab. 1). Les composites Cu-Nb étudiés ici présentent des densités de dislocations similaires, associées aux grandes déformations à froid, et donc l'effet de β ne sera pas pris en compte dans la suite.

Concernant l'effet de taille, nous utilisons l'expression issue de Ashcroft et Mermin [26] et Thilly [5] qui relie la conductivité du matériau au libre parcours moyen ℓ des électrons :

$$\ell_{\text{Cu}}(T) = 66 \sigma_{\text{massif-Cu}}(T) \quad (18a)$$

$$\ell_{\text{Nb}}(T) = 87 \sigma_{\text{massif-Nb}}(T) \quad (18b)$$

(avec σ_{massif} en $\mu\Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ et ℓ en nm). Ici, σ_{massif} et ℓ dépendent de la température, et le libre parcours moyen ℓ des électrons est défini comme la distance moyenne que ces derniers peuvent parcourir entre deux collisions. Initialement, Dingle [27] a étudié les effets de taille dans la diffusion des électrons. Il a modélisé la conductivité d'un fil fin, infiniment long, et de diamètre δ , et s'est donc intéressé à la façon dont la conductivité longitudinale est affectée par les dimensions transversales du fil, en raison de la diffusion des électrons aux surfaces/interfaces. Deux cas extrêmes, $\delta \gg \ell$ et $\delta \ll \ell$, ont été considérés. En modifiant le modèle de Dingle [27] and Thilly [5] obtient

les équations suivantes en fonction des rapports δ/ℓ :

$$\frac{\sigma}{\sigma_{\text{massif}}} = \frac{\delta}{\ell} - \frac{3}{8} \left(\frac{\delta}{\ell} \right)^2 \left[\ln \left(\frac{\ell}{\delta} \right) + 1.059 \right] \text{ pour } \delta < 0.467\ell, \quad (19a)$$

$$\frac{\sigma}{\sigma_{\text{massif}}} = \left(1 + \frac{\ell}{\delta} \right)^{-1} \text{ pour } \delta \in [0.467\ell, 3\ell[, \quad (19b)$$

$$\frac{\sigma}{\sigma_{\text{massif}}} = 1 - \frac{3}{4} \frac{\ell}{\delta} \text{ pour } \delta > 3\ell. \quad (19c)$$

Le choix de l'une de ces trois équations pour le calcul de la conductivité locale $\sigma^{(i)}$ d'une phase i se fait en fonction du rapport $\delta^{(i)}/\ell$, où $\delta^{(i)}$ est la dimension théorique des différentes phases i des conducteurs Cu-Nb (Fig. 4). Les valeurs de $\delta^{(i)}$ peuvent être estimées en supposant que toutes les phases forment des cylindres ou des tubes parfaits et concentriques déformés de manière homothétique lors de l'étirage du composite [7]. Le diamètre extérieur d du fil considéré, ainsi que la fraction volumique $f^{(i)}$ des composants doivent être pris en compte. La fraction volumique, qui n'est pas modifiée par l'étape d'étirage, est déterminée à partir des dimensions initiales des tubes et fils de Cu et Nb introduits dans le procédé. Nous désignons par $e_{\text{Nb-t}}$ l'épaisseur des tubes de niobium, $d_{\text{Cu-f}}$ le diamètre des filaments de cuivre, et $d_{\text{Cu-i}}$ la largeur des canaux de la matrice multi-échelle de cuivre, avec $i = 0, 1, 2, 3$. Ainsi, $\delta^{(i)} = d_{\text{Cu-0}}$ pour la phase Cu-0, $\delta^{(i)} = d_{\text{Cu-f}}$ pour Cu-f, et $\delta^{(i)} = e_{\text{Nb-t}}$ pour les tubes de Nb. Ces valeurs sont reportées dans le Tableau 1. Dans ce travail, nous considérons une série des conducteurs nano-composites Cu-Nb contenant 85^3 motifs élémentaires et étirés aux diamètres $d = 0.506, 0.592, 0.640, 0.692, 0.748, 0.875, 1.023, 1.511, 1.634$ et 2.064 mm [7]. Le Tableau 1 indique la dimension $\delta^{(i)}$ dans la phase i , la fraction volumique $f^{(i)}$ et les conductivités locales $\sigma^{(i)}$ à 293 K correspondantes, calculées par les équations (18) et (19), pour le plus grand ($d = 2.064$ mm) et le plus petit ($d = 0.506$ mm) diamètre.

3.2 Homogénéisation multi-échelle

Une fois la conductivité locale $\sigma^{(i)}$ dans chaque phase i déterminée (Sect. 3.1), le modèle Auto-Cohérent Généralisé (Fig. 3a) ainsi que le modèle Homogénéisation Périodique (Fig. 3c) sont tous les deux appliqués à l'échelle du Zoom 1, en considérant une micro-structure de motifs co-cylindriques avec trois couches, Cu-f/Nb-t/Cu-0. Avec ces deux modèles, nous obtenons des conductivités effectives $\tilde{\sigma}$ pratiquement confondues, l'écart relatif entre les deux estimations étant $\sim 0.5\%$.

À l'échelle du Zoom 2, les fibres longues sont composées de deux couches : (1) les nano-composites Cu-Nb qui contiennent 85 motifs parallèles issus du Zoom 1, et (2) la matrice de Cu-1. Similairement au cas du Zoom 1, les approximations de la géométrie de ACG et HP sont illustrées dans les figures 3b et 3d : répartition aléatoire pour ACG, et périodique pour HP. Dans le processus itératif, la conductivité de la couche interne du

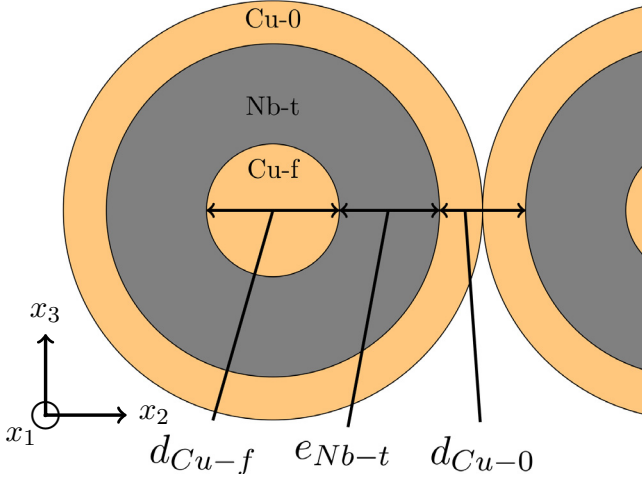


Fig. 4. Largeur théorique des canaux δ : sur le Zoom 1, e_{Nb-t} désigne l'épaisseur des tubes de niobium, d_{Cu-f} le diamètre des filaments de cuivre, d_{Cu-0} la largeur des canaux de cuivre.

Fig. 4. Theoretical channel width δ : on the Zoom 1, e_{Nb-t} denotes the thickness of the niobium tubes, d_{Cu-f} the diameter of the copper filaments, d_{Cu-0} copper channel width.

Zoom 2 ($\tilde{\sigma}^{(1)}_{Zoom 2}$) est donnée par la conductivité effective obtenue sur le Zoom 1 ($\tilde{\sigma}_{Zoom 1}$). D'autre part, la conductivité de la deuxième couche du Zoom 2 est donnée par la conductivité locale de Cu-1, i.e. ($\tilde{\sigma}^{(2)}_{Zoom 2} = (\tilde{\sigma})_{Cu-1}$). Ainsi, une procédure de calcul multi-échelle est mise en place pour les modèles ACG et HP, comme illustré sur les figures 3a–3c et 3b–3d. Les conductivités effectives sur le Zoom 2 ($\tilde{\sigma}_{Zoom 2}$) ainsi obtenues avec les deux modèles sont encore pratiquement confondues. Le même processus itératif est répété jusqu'à échelle macroscopique (Zoom 4), permettant d'estimer les conductivités à toutes les échelles ($\tilde{\sigma}_{Zoom i}$ avec $i = 2, 3, 4$:

$$\left. \begin{array}{l} (\tilde{\sigma}^{(1)})_{Zoom i} = (\tilde{\sigma})_{Zoom (i-1)} \\ (\tilde{\sigma}^{(2)})_{Zoom i} = (\tilde{\sigma})_{Cu-(i-1)} \end{array} \right\} \Rightarrow (\tilde{\sigma})_{Zoom i} \Rightarrow \dots (\tilde{\sigma})_{macro}. \quad (20)$$

La figure 5 illustre les résultats sur le Zoom 4 à 293 K : les traits continus reportent les résultats obtenus avec le modèle analytique ACG et les points ceux du modèle par éléments finis HP. Il est remarquable de constater que les deux conductivités effectives, longitudinale $\tilde{\sigma}_L$ et transversale $\tilde{\sigma}_T$, obtenues avec les deux modèles, sont quasiment confondues, pour tous les diamètres du conducteur d . Le faible écart entre ces deux prédictions s'explique par le fait que (i) le contraste entre la conductivité des deux phases reste faible pour Cu-Nb, et (ii) les deux modèles prennent en compte la présence d'une phase jouant le rôle de matrice. La diminution de la conductivité $\tilde{\sigma}$ avec la réduction du diamètre d est due à la réduction des largeurs des canaux δ associée à l'étirage (effet de taille).

4 Comparaison expérimentale

Dubois [7] a déterminé expérimentalement la conductivité longitudinale effective $\tilde{\sigma}_L$ sur la même série de

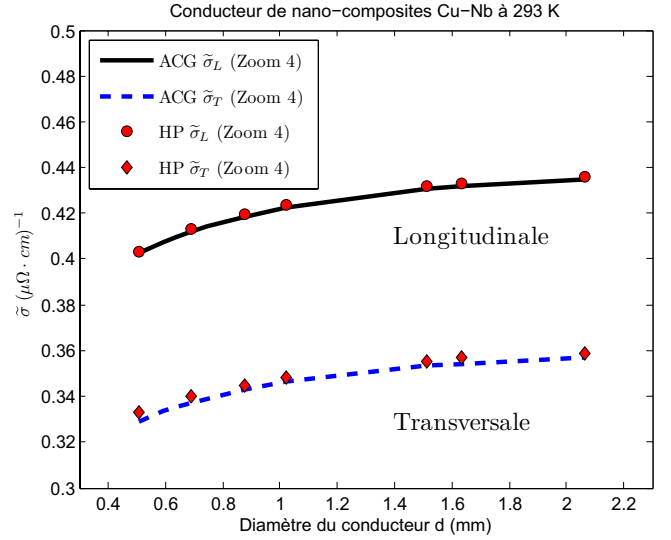


Fig. 5. Conductivités effectives longitudinale et transversale en fonction du diamètre du conducteur, pour les fils de nano-composites Cu-Nb sur le Zoom 4 (i.e. à l'échelle macroscopique) à 293 K, obtenues par le modèle Auto-Cohérent Généralisé (ACG, traits continus) et par Homogénéisation Périodique (HP, points).

Fig. 5. Effective longitudinal and transverse conductivities with respect to the conductor diameter, for nano-composite Cu-Nb wires on Zoom 4 (i.e. at the macroscopic scale) at 293 K, obtained with the Generalized Self-Consistent model (GSC, continuous lines) and the Periodic Homogenization model (PH, points).

conducteurs nano-composites Cu-Nb par la méthode des quatre pointes [28] : un courant continu d'intensité j est injecté entre deux pointes et une mesure de tension est réalisée entre deux autres pointes placées entre les pointes d'injection de courant. La conductivité transversale n'a pas encore pu être mesurée (travail en cours) ; il s'agit en effet d'une mesure plus délicate, en raison du faible diamètre des fils, mais aussi de sa microstructure composée avec une peau en Cu (Cu-3) entourant le fil.

L'incertitude sur la mesure de conductivité est de l'ordre de 5 % pour les échantillons composites dans la direction longitudinale $\tilde{\sigma}_L$ et pour les échantillons massifs σ_{massif} . Les résultats des modèles ACG et HP étant directement dépendants de la valeur de la conductivité σ_{massif} de chacune des phases polycristallines Cu et Nb, l'incertitude de mesure sur σ_{massif} entraîne une incertitude sur les prédictions du modèle, également de l'ordre de ± 5 %.

La comparaison avec les données expérimentales est illustrée sur la figure 6. Rappelons que la conductivité longitudinale obtenue par le modèle Auto-Cohérent Généralisé (ACG) est ici confondue avec les résultats du modèle périodique (HP) ; en effet, la conductivité longitudinale, dont la valeur exacte est donnée par la loi des mélanges, ne dépend pas du caractère périodique de la microstructure. La figure 6 montre que les résultats des modèles théoriques sont en très bon accord avec les données expérimentales, pour tous les diamètres considérés. Ce résultat provient d'une prise en compte

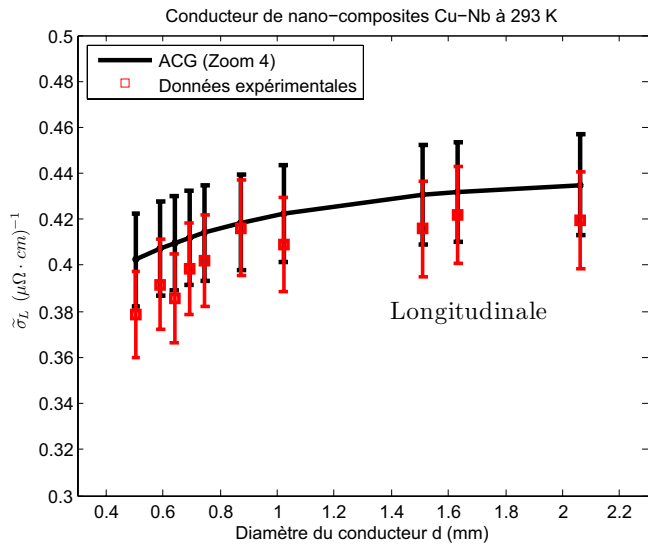


Fig. 6. Conductivité effective longitudinale obtenue avec le modèle ACG (Auto-Cohérent Généralisé, trait continu), et comparée aux données expérimentales (points), en fonction du diamètre du conducteur, pour les fils de nano-composites Cu-Nb sur le Zoom 4 (échelle macroscopique) à 293 K. L'incertitude sur la mesure de la conductivité des échantillons massifs ($\sim 5\%$) entraîne une incertitude du même ordre sur les résultats du modèle ACG.

Fig. 6. Effective longitudinal conductivity obtained with the GSC model (Generalized Self-Consistent scheme, continuous line), compared with experimental data (points), for various conductor diameters, for nano-composite Cu-Nb wires on the Zoom 4 (macroscopic scale) at 293 K. Uncertainties on the measurement of resistivity on bulk specimen ($\sim 5\%$) leads to an uncertainty of a similar magnitude on model results.

pertinente (i) de la conductivité locale et (ii) des transitions des échelles dans les modèles utilisés.

5 Conclusions et perspectives

En prenant en compte les effets de taille (ou largeur des canaux δ), la température T et la densité de dislocations β à l'aide de la loi Dingle modifiée, nous avons déterminé la conductivité locale $\sigma^{(i)}$ dans chaque phase i . Par un processus itératif, le caractère multi-échelle est pris en compte dans le modèle analytique ACG et dans les calculs par éléments finis HP. Les conductivités effectives $\tilde{\sigma}$ obtenues par ACG et HP sont parfaitement confondues dans les directions longitudinale et transversale.

Au niveau de l'approximation de la géométrie, nous avons considéré une microstructure formée de motifs co-cylindriques répartis aléatoirement par ACG et périodiquement par HP. Les résultats sur ces deux modélisations sont pratiquement confondus sur tous les zooms. Ce résultat suggère que la distribution des fibres longues joue un rôle mineur sur la conductivité effective $\tilde{\sigma}$ du conducteur Cu-Nb, dans la direction transversale. Dans la direction longitudinale, il est rappelé que la solution exacte est indépendante du caractère périodique

de la microstructure. Ces résultats justifient pleinement l'emploi du modèle ACG en champs moyens pour l'estimation de la conductivité effective, qui permet un gain de temps de calculs très significatif par rapport aux calculs par Éléments Finis. Les conductivités effectives $\tilde{\sigma}$ déterminées par ACG et HP sont également en bon accord avec les données expérimentales disponibles dans la direction longitudinale.

Ce travail se poursuit actuellement selon les directions suivantes :

1. La méthode classique des quatre points ne permet de mesurer que la conductivité longitudinale. Il reste donc à effectuer les mesures de conductivité transversale pour une validation complète des modèles. Les comparaisons expérimentales à plusieurs températures T seront aussi importantes pour la validation des modèles.
2. Dans ce travail, nous avons utilisé des valeurs théoriques pour les largeurs des canaux δ . Les observations expérimentales montrent cependant une certaine fluctuation de ces largeurs, probablement associées à des hétérogénéités de déformation lors des étapes de mise en forme. Une évaluation plus fine des largeurs effective est en cours pour affiner les prédictions, puisque la largeur des canaux influence sur la conductivité locale.
3. Basée sur les résultats obtenus en conductivité, une approche similaire est en cours afin d'estimer les propriétés élastiques et plastiques, afin de positionner le comportement modélisé de ces fils Cu-Nb sur des cartes d'Ashby, et, à terme, pouvoir en tirer les paramètres microstructuraux importants en vue d'une optimisation du matériau et/ou du procédé d'élaboration.

Remerciements. Les auteurs remercient l'ANR pour le financement du projet METAFORES ANR-12-BS09-0002.

Références

- [1] J. Béard, J. Billette, P. Frings, M. Suleiman, F. Lecouturier, *J. Low Temperature Phys.* **170** (2013) 442-446
- [2] National Research Council, High Magnetic Field Science and Its Application in the United States : Current Status and Future Directions, The National Academies Press, 2013
- [3] L. Frydman, *J. Magnetic Resonance* **242** (2014) 256-264
- [4] L. Thilly, F. Lecouturier, Les nanosciences 2 : Nanomatériaux et nanochimie, chapter Applications des nanomatériaux : mécanique : bobines hauts champs, Ed. Belin, coll. Echelles, 2006, pp. 650-658
- [5] L. Thilly, Exploration théorique et expérimentale de fils nanocomposites continus présentant des propriétés extrêmes de conductivité électrique et de limite élastique, Ph.D. thesis, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, 2000
- [6] J.B. Dubois, L. Thilly, P.-O. Renault, F. Lecouturier, *Adv. Eng. Mater.* **14** (2012) 998-1003

- [7] J.B. Dubois, Conducteurs nanocomposites métalliques élaborés par déformation plastique sévère : formation et stabilité thermo-mécanique des nanostructures, propriétés induites, Ph.D. thesis, Université de Poitiers, 2010
- [8] K. Spencer, F. Lecouturier, L. Thilly, J.D. Embury, *Adv. Eng. Mater.* **6** (2004) 290-297
- [9] L. Thilly, F. Lecouturier, J. Von Stebut, *Acta Materialia* **50** (2002) 5049-5065
- [10] L. Thilly, M. Véron, O. Ludwig, F. Lecouturier, *Mater. Sci. Eng. A* **309** (2001) 510-513
- [11] V. Vidal, L. Thilly, F. Lecouturier, P.-O. Renault, *Scripta Materialia* **57** (2007) 245-248
- [12] J.B. Dubois, L. Thilly, P.-O. Renault, F. Lecouturier, M. Di Michiel, *Acta Materialia* **58** (2010) 6504-6512
- [13] M.J. Demkowicz, L. Thilly, *Acta Materialia* **59** (2011) 7744-7756
- [14] L. Thilly, P.-O. Renault, S. Van Petegem, S. Brandstetter, B. Schmitt, H. Van Swygenhoven, V. Vidal, F. Lecouturier, *Appl. Phys. Lett.* **90** (2007) 241907
- [15] L. Thilly, S. Van Petegem, P.-O. Renault, F. Lecouturier, V. Vidal, B. Schmitt, H. Van Swygenhoven, *Acta Materialia* **57** (2009) 3157-3169
- [16] Z. Hashin, D. Bagchi, B.W. Rosen, Non-linear behavior of fiber composite laminates, NASA (NASA-CR-1974), 1974
- [17] E. Hervé, A. Zaoui, *Int. J. Eng. Sci.* **31** (1993) 1-10
- [18] E. Hervé, A. Zaoui, *Int. J. Eng. Sci.* **33** (1995) 1419-1433
- [19] S. Joannes, E. Hervé-Luanco, Multiscale modeling of transport phenomena for materials with n-layered embedded fibres : an analytical and numerical-based approach, Publication in progress.
- [20] J. Besson, G. Cailletaud, J.-L. Chaboche, S. Forest, *Non-linear mechanics of materials*, Springer, 2009, Vol. 167
- [21] S. Forest, G. Cailletaud, D. Jeulin, F. Feyel, I. Galliet, V. Mounoury, S. Quilici, *Mécanique & industries* **3** (2002) 439-456
- [22] T. Kanit, S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury, D. Jeulin, *Int. J. Solids Struct.* **40** (2003) 3647-3679
- [23] R.M. Christensen, K.H. Lo, *J. Mech. Phys. Solids* **27** (1979) 315-330
- [24] E Hervé, *Int. J. Solids Struct.* **39** (2002) 1041-1058
- [25] J. Sivardière, Symétrie et propriétés physiques – Du principe de Curie aux brisures de symétrie, EDP Sciences, 2008
- [26] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, Solid State Physics, Saunders College, 1976
- [27] R.B. Dingle, *Proc. Roy. Soc. London. Ser. A. Math. Phys. Sci.* **201** (1950) 545-560
- [28] Commission Electrotechnique Internationale, Méthode de mesure de la résistivité des matériaux métalliques, Technical report, Publication CEI 468, 1974