

# Conductivité thermique effective de composites constitués d'un réseau tétragonal de sphères conductrices en contact imparfait avec la matrice isolante

Cristina FILIP, Bertrand GARNIER\*, Florin DANES

Laboratoire de Thermocinétique, UMR CNRS 6607  
Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes  
3 rue Christian Pauc - BP50609- 44300 Nantes, France;

\*(auteur correspondant : [bertrand.garnier@univ-nantes.fr](mailto:bertrand.garnier@univ-nantes.fr))

**Résumé** - La méthode des éléments finis a été utilisée pour calculer la conductivité thermique effective (et relative)  $E$  de composites constitués d'un réseau tétragonal de sphères conductrices de chaleur, celles-ci étant en contact imparfait avec la matrice isolante. En utilisant des grandeurs réduites, on a pu dégager l'importance relative des trois facteurs dont dépend la conductivité  $E$  i.e. un paramètre géométrique  $B$  lié à l'épaisseur relative de la couche isolante entre deux sphères, la résistance de contact réduite  $C$  entre inclusion sphérique et matrice et, la résistivité relative  $D$  des deux matériaux. Les effets des différents facteurs sont comparés et on propose des lois asymptotiques de prédiction de  $E$  pour certaines gammes de valeurs des trois facteurs  $B$ ,  $C$  et  $D$ .

## Nomenclature

$a$	rayon de la sphère, $m$	$S, T$ températures
$b$	hauteur de la cellule élémentaire, $m$	<i>Symboles grecs</i>
$B$	distance réduite entre 2 sphères	$\lambda$ conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$
$C$	résistance de contact réduite	$\theta, \tau$ températures, $K$
$D$	rapport de conductivité entre phases	<i>Indices et exposants</i>
$E$	conductivité effective / conductivité matrice	$m$ matrice
$J$	densité de flux de chaleur réduite	$f$ charge
$r_c$	résistance de contact, $m^2.K.W^{-1}$	$eff$ effective (composite)

## 1. Objectifs

Ce travail a pour but la conception et l'élaboration de composites bons conducteurs de chaleur, c'est à dire avec une conductivité thermique effective du composite au moins trois fois supérieures à celle de la matrice. Si leurs performances thermiques sont suffisantes, les composites notamment à matrice polymère pourraient être utilisés pour réaliser des échangeurs de chaleur tels que les radiateurs de véhicule, les boîtiers de refroidissement de batteries ou de boîtiers électroniques. L'utilisation de ce type de composites à matrice polymère réside d'une part dans l'allègement de l'échangeur et d'autre part dans la facilité de réalisation de pièces complexes par exemple par simple injection si le polymère est de type thermoplastique. Actuellement, les composites de ce type sont insuffisamment conducteurs pour envisager leurs utilisations pour de telles applications.

D'une manière générale, la conductivité thermique effective de composites dépend de très nombreux facteurs. Pour des composites à matrice thermoplastique chargé de particules métalliques, on a ainsi recensé une vingtaine de facteurs [1] d'une part liés au matériau composite (conductivités des deux phases, taux de charge, microstructure, éventuellement

nature et concentration en surfactant ...) et d'autre part liés au procédé de fabrication des pièces en composite (puissance du mélangeur, temps de résidence, température et pression d'injection...). Seuls les facteurs liés à l'effet du matériau composite seront considérés dans cette étude.

L'objectif du présent travail est de contribuer à améliorer la conception de ces matériaux en dégageant, à l'aide d'une modélisation numérique, l'influence sur  $E$  des principaux facteurs liés à la microstructure du composite et aux aspects thermiques pertinents, ceci en vue d'améliorer la conception de ces composites bons conducteurs de chaleur. On a considéré un composite à deux phases avec une matrice continue remplie uniformément d'inclusions sphériques de même diamètre. Pour obtenir une conductivité  $E$  relativement importante, on a considéré des inclusions à conductivité au moins 10 fois supérieure à celle de la matrice ainsi qu'une couche de polymère (entre deux sphères successives) de faible épaisseur typiquement 10 fois inférieure au diamètre de l'inclusion.

## **2. Modèles existants de conductivité effective des polymères chargés avec contact imparfait entre inclusion et matrice**

On a souvent négligé l'effet de la résistance de contact  $r_c$  entre inclusion et matrice dans les modèles de conductivité effective de composites. Lu [2] a montré que l'erreur en considérant un contact parfait est particulièrement importante dans les composites à matrice polymère puisque le procédé de mélange induit inévitablement des contraintes dans les couches de polymères entourant chaque inclusion. En tenant compte de  $r_c$ , Benveniste et Miloh [3] ont développé un modèle de conductivité effective qui a été confirmé par les travaux de Hasselman et Johnson [4]. Par ailleurs, la connaissance de  $r_c$  inclusion/matrice constitue une difficulté, en effet sa mesure directe avec des dispositifs capables d'analyser les transferts à micro échelle est à ses débuts [5]. De plus, on considère souvent (faute de dispositif de mesure adapté) que la valeur de  $r_c$  est la même quelle que soit la taille des inclusions.

Beaucoup de travaux ont été effectués en ce qui concerne les modèles de conductivité effectives [6]. Pour les polymères fortement chargés, les modèles sont souvent non satisfaisants. Les solutions même si elles sont physiquement correctes, sont soit géométriquement limitées (réseau cubique ou sphères isolées), soit très complexes ou limitées à de faibles taux de charge et à de faibles conductivités effectives. On a ainsi privilégié une modélisation numérique des transferts par la méthode des éléments finis qui est plus adaptée au cas des polymères fortement chargés i.e. pour lesquels les valeurs de  $E$  sont importantes.

## **3. Modélisation de la conductivité effective**

### **3.1 Hypothèses**

Afin de quelque peu simplifier les calculs sans limiter la portée des travaux, les hypothèses suivantes ont été adoptées :

- les transferts de type radiatifs, convectifs sont négligeables
- les conductivités des matériaux sont indépendantes de la température, position ou direction
- le contact thermique entre inclusion et matrice peut être caractérisé par un seul paramètre : la résistance thermique de contact
- les inclusions sont des sphères de même taille, la résistance de contact inclusion/matrice étant la même en tout point de l'interface
- les sphères sont uniformément réparties dans un espace tridimensionnel.

### 3.2 Cellule élémentaire et grandeurs réduites

La cellule élémentaire est tétragonale et contient une sphère conductrice de rayon  $a$  centrée dans une cavité parallélépipédique de dimensions  $2a \times 2a \times 2b$  (Fig. 1a) avec  $b \geq a$ . Soient  $\theta$  et  $\tau$ , les températures respectivement dans l'inclusion et la matrice. Les faces inférieure ( $z=-b$ ) et supérieure ( $z=b$ ) sont isothermes avec des températures respectivement égales à  $\tau_2$  et  $\tau_1$ , les quatre faces latérales étant adiabatiques. Le choix de conditions aux limites de type température imposée provient des applications de ces composites conducteurs comme paroi séparant deux milieux fluides à températures différentes et plus ou moins constantes. En tenant compte des symétries, seulement  $1/16^{\text{ème}}$  de la cellule élémentaire nécessite d'être considéré pour les calculs (Fig. 1b).

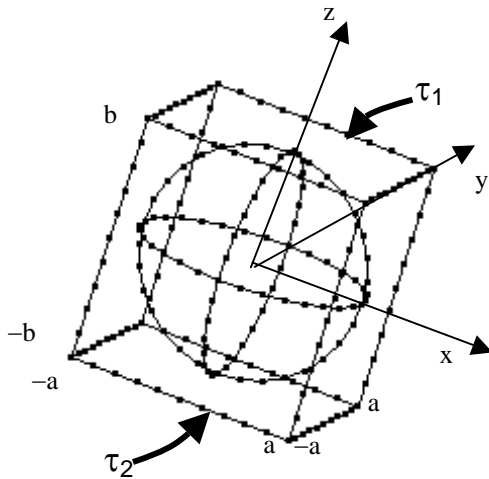


Figure 1a : Cellule élémentaire

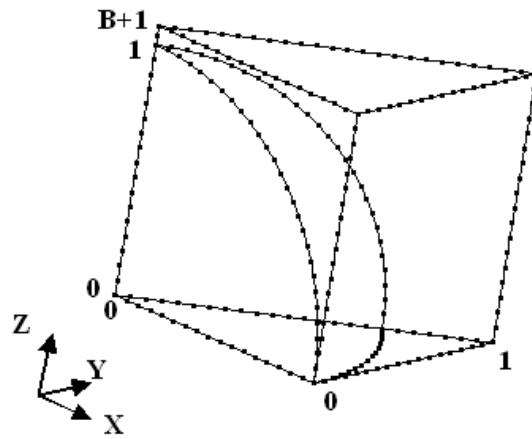


Figure 1b : Cellule élémentaire de calcul

Soient  $\lambda_f$  et  $\lambda_m$  les conductivités de la charge et de la matrice,  $r_c$  la résistance thermique de contact inclusion/matrice et  $\lambda_{eff}$  la conductivité effective transversale (z-direction). Les grandeurs adimensionnelles ont été définies comme suit:

- $X = x/a$ ;  $Y = y/a$  et  $Z = z/a$  pour les dimensions
- $S = \frac{2\theta - \tau_1 - \tau_2}{\tau_1 - \tau_2}$ ;  $T = \frac{2\tau - \tau_1 - \tau_2}{\tau_1 - \tau_2}$  pour les températures de la charge et de la matrice,
- $B = \frac{b-a}{a}$  et  $D = \frac{\lambda_m}{\lambda_f}$ , pour la résistance conductive relative  $B$  de la couche isolante entre deux sphères consécutives et pour celle  $D$  de la sphère conductrice.
- $C = \frac{r_c \lambda_m}{a}$  et  $E = \frac{\lambda_{eff}}{\lambda_m}$ , pour la résistance de contact et la conductivité effective transversale, toutes deux en grandeur relative.

De la valeur de  $B$ , on peut en déduire le taux de charge :  $\varphi = \frac{\text{volume de la sphère}}{\text{volume de la cellule}} = \frac{\pi}{6(1+B)}$ .

Finalement, l'adimensionnalisation des données géométriques et physiques permet d'exprimer  $E$  en fonction des seuls paramètres  $B$ ,  $C$  et  $D$  :  $E = E(B, C, D)$

### 3.3 Résolution des équations et calcul de la conductivité effective

Le champ de température est gouverné par les équations de Laplace :  $\nabla^2 S = 0$ ,  $\nabla^2 T = 0$  et les conditions aux frontières (internes et externes) évoquées précédemment (Fig. 1a) avec

notamment pour les faces externes non adiabatiques les expressions suivantes :

$$S(X, Y, 0) = T(X, Y, 0) = 0 \text{ et } T(X, Y, B+1) = 1 \quad (1)$$

Le flux de chaleur  $Q$  (en grandeur réduite) suivant  $z$  et traversant la cellule élémentaire est calculé en intégrant le flux relatif défini en chaque point de la face supérieure ( $Z=B+1$ ) :

$$Q = \int_0^1 \left( \int_0^X J_z dY \right) dX \quad \text{où} \quad J_z = \left. \frac{\partial T}{\partial Z} \right|_{Z=B+1} \quad (2)$$

ceci permettant de calculer la conductivité effective  $E$  du composite :  $E = 2 \cdot Q \cdot (1+B)$ .

Faute de solution analytique en configuration 3D, les calculs ont été effectués par éléments finis notamment en utilisant le module thermique du logiciel Comsol v3.2 [7] avec l'option conduction en régime stationnaire. Cet outil connu pour ces capacités à résoudre des équations différentielles multi-physiques a été choisi car il permet de prendre en compte le concept de résistance thermique de contact i.e. en assurant directement un saut de température à l'interface charge/ matrice. La cellule de calcul (Fig. 1b) a été maillée à l'aide du mailleur automatique Comsol, les éléments finis étant quadratiques et de type Lagrange. Le maillage ne dépend pas des paramètres physiques (i.e.  $C$  et  $D$ ) mais seulement du paramètre géométrique  $B$ . On a choisi un nombre de mailles qui varie entre 48000 et 58000 lorsque  $B$  décroît de 0,075 à 0. Ce nombre est suffisant car en augmentant le nombre de maille d'un facteur 3 à 4 (nécessitant un temps de calcul 5 à 6 fois plus élevé), on a constaté que les résultats de calcul de  $E$  ne différaient que de 0.1%. La convergence de la solution dépend des valeurs de  $B$ ,  $C$  et  $D$ . Le temps de calcul est de l'ordre de 60 à 120 s avec un PC Pentium 4 de fréquence 3.06 GHz et de mémoire RAM 512 Mo. L'utilisation de multiplicateurs de Lagrange lors de la résolution permet lors du post-traitement de réaliser des calculs précis de flux de chaleur et donc de  $E$  [7].

## 4. Résultats

Les figures 1 et 2 illustrent les distributions de flux de chaleur  $J_z$  sur la face supérieure pour différentes valeurs de  $B$ ,  $C$  et  $D$ . Pour des particules proches et une faible résistance de contact, il y a prédominance du flux de chaleur lorsque  $X$  est proche de 0 (Fig. 1), ce qui s'explique par la plus faible épaisseur de la couche isolante à cet endroit. Par contre, pour des fortes valeurs de  $C$ , on obtient des valeurs de  $J_z$  plus faibles en  $X=0$  (Fig. 2).

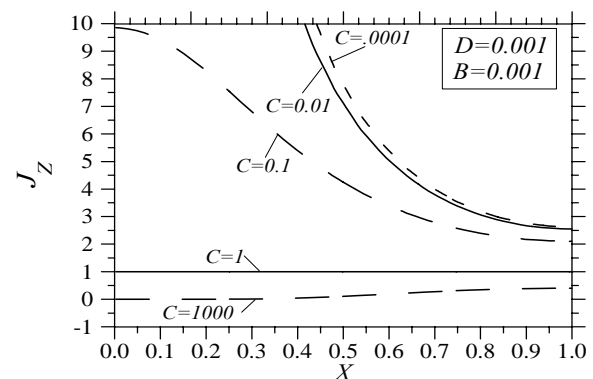
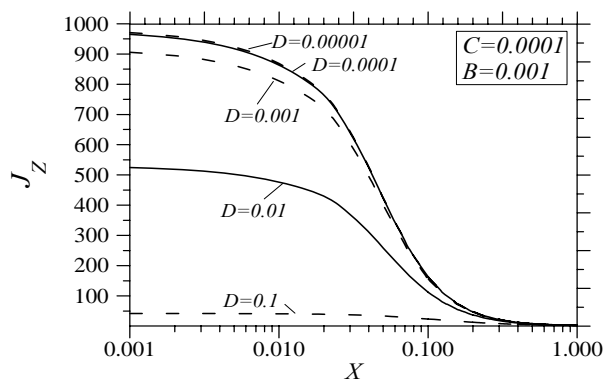


Figure 1 : Flux de chaleur réduit  $J_z$  vs  $D$  sur la ligne  $Y=0$  et  $Z=1.001$       Figure 2 : Flux de chaleur réduit  $J_z$  vs  $C$  sur la ligne  $Y=0$  et  $Z=1.001$

Pour  $B$  variant de 0 à 0.0625,  $C$  de  $10^{-5}$  à  $10^3$  et  $D$  de  $10^{-5}$  à  $10^{-1}$ , on a obtenu des valeurs de  $E$  comprises entre 0.34 et 17. Une partie de ces résultats est présentée dans le tableau 1 pour  $D$  constant et dans la figure 3 pour  $C$  constant. On constate que l'accroissement des paramètres  $B$ ,  $C$  ou  $D$  se traduit par une diminution de  $E$ . Une comparaison de nos résultats avec ceux

obtenus par Lu et Kou [8] dans une configuration similaire donne des écarts sur  $E$  ne dépassant pas 0.1%.

$B \downarrow C \rightarrow$	0.00001	0.0001	0.001	0.01	0.1	1	10	100	1000
0	14.3983	12.9747	9.8898	6.4961	3.1523	0.9995	0.4258	0.3522	0.3446
0.001	9.8933	9.7683	8.9070	6.3613	3.1421	0.9995	0.4260	0.3524	0.3448
0.0025	8.5894	8.5375	8.0968	6.1786	3.1271	0.9995	0.4263	0.3526	0.3450
0.005	7.5946	7.5676	7.3209	5.9239	3.1026	0.9995	0.4268	0.3531	0.3455
0.0075	7.0059	6.9876	6.8160	5.7087	3.0790	0.9995	0.4273	0.3536	0.3459
0.01	6.5937	6.5798	6.4476	5.5249	3.0559	0.9995	0.4279	0.3540	0.3464
0.015	6.0159	6.0065	5.9156	5.2204	3.0118	0.9995	0.4289	0.3550	0.3473
0.02	5.6101	5.6030	5.5337	4.9749	2.9699	0.9995	0.4299	0.3559	0.3482
0.025	5.2997	5.2940	5.2387	4.7706	2.9303	0.9995	0.4310	0.3568	0.3492
0.0375	4.7504	4.7465	4.7085	4.3748	2.8398	0.9995	0.4336	0.3591	0.3514
0.05	4.3743	4.3713	4.3424	4.0825	2.7592	0.9995	0.4361	0.3615	0.3537
0.0625	4.0916	4.0893	4.0659	3.8527	2.6869	0.9995	0.4387	0.3638	0.3560
0.075	3.8669	3.8649	3.8454	3.6645	2.6215	0.9995	0.4413	0.3661	0.3583

Tableau 1 : Conductivité effective  $E$  vs.  $B$  et  $C$  pour  $D$  constant ( $D=0.001$ )

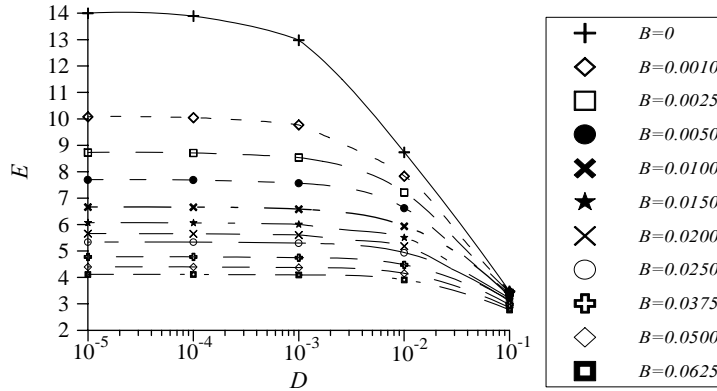


Figure 3 : Conductivité effective  $E$  vs.  $D$  et  $B$  pour  $C$  constant,  $C=0.001$

Par ailleurs, si un facteur est bien plus grand que les autres (par exemple 10 fois), on obtient une réponse quasi-linéaire pour la dépendance de  $E$  avec ce paramètre. La figure 4 illustre ceci pour le cas où  $B > \{C, D\}$ .

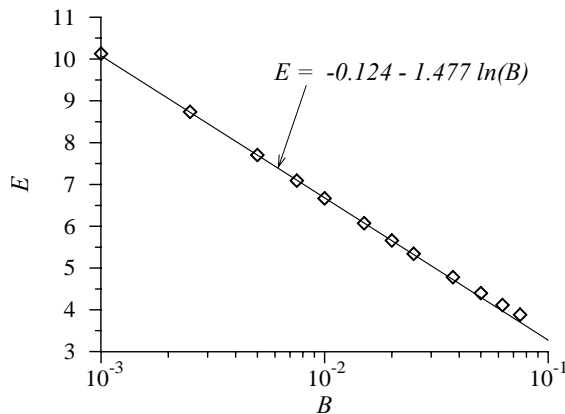


Figure 4 : Conductivité effective  $E$  vs.  $B$  avec  $B \gg \{C, D\}$

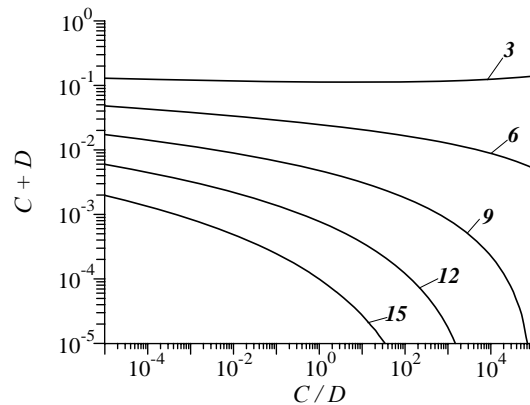


Figure 5 : Conductivité effective  $E$  vs.  $C+D$  et  $C/D$  pour  $B=0$

Comme l'a signalé Hasselman [4], le facteur  $C$  est substituable par  $D$  dans la dépendance  $E(B, C, D)$  :

$$C_1 + D_1 = C_2 + D_2 \quad \Rightarrow \quad E(B, C_1, D_1) = E(B, C_2, D_2) \quad (3)$$

Les figures 5 et 6 que l'on a obtenues montrent que la substitution n'est possible que pour des comportements asymptotiques. Elle est ainsi valide quand  $C+D$  (Fig. 5) ou  $B$  (Fig.6) sont assez grand, c'est à dire quand  $E$  est petit.

Une étude très précise avec une erreur sur  $E$  estimée à 0.01% a été menée afin de comparer quantitativement l'effet des trois facteurs sur la conductivité  $E$ . Un ensemble de 141 calculs de  $E$  sur 21 maillages a été effectué en variant chaque facteur entre 0.001 et 0.1 et ceci suivant 20 plans d'expériences factoriel  $2^3$  dans l'espace  $\{B, C, D\}$ . Il en ressort que les poids des facteurs ne sont pas égaux et varient avec la somme  $\sigma$  des facteurs comme l'illustre la figure 7. Pour un facteur somme  $\sigma$  qui augmente entre 0.003 et 0.3, on constate que le poids de  $B$  décroît, celui de  $D$  augmente et celui de  $C$  présente un minimum assez peu prononcé pour  $\sigma \cong 0.15$ . En outre, le poids  $W_C$  est le plus grand des trois, le second étant  $W_B$  pour  $\sigma < 0.071$  et  $W_D$  pour  $\sigma > 0.071$ .

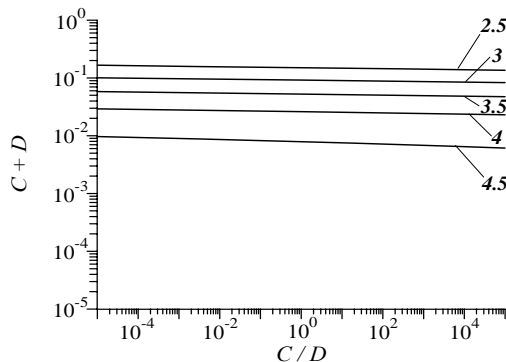


Figure 6 : Conductivité effective  $E$  vs.  $C+D$  et  $C/D$  pour  $B$  élevé ( $B=0.0625$ )

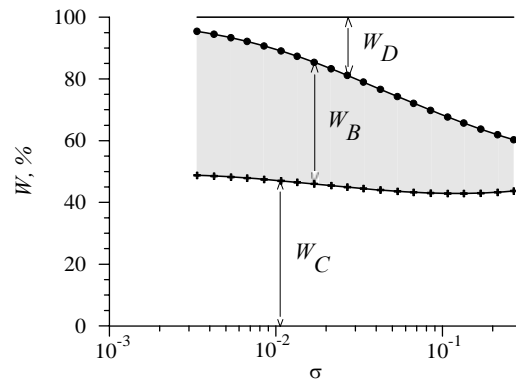


Figure 7 : Poids des facteurs  $B, C$  et  $D$  sur la conductivité  $E$  pour des valeurs quasi-égales des trois facteurs ( $\sigma = B+C+D$ ).

## 5. Conclusion

La conductivité effective de composites avec des sphères isométriques réparties suivant un réseau tétragonal peut être calculée avantageusement en résolvant l'équation de la chaleur par la méthode des éléments finis et en utilisant des grandeurs réduites. Les trois facteurs dont dépend  $E$  sont alors :  $B$ - épaisseur de la couche isolante entre sphère,  $C$ - résistance de contact réduite et  $D$  conductivité relative. On a pu obtenir des résultats très intéressants sur l'importance relative de ces paramètres et sur des comportements asymptotiques de  $E$ . Il ressort ainsi de cette étude que pour obtenir des valeurs importantes de  $E$ , il faut réduire en parallèle les trois facteurs  $B, C$  et  $D$  et non pas un seul. En pratique, il est plus facile d'augmenter la conductivité des inclusions, de réduire la distance entre les particules, la résistance de contact inclusion/matrice restant plus difficile à mesurer et à maîtriser.

## Références

- [1] F. Danes, B. Garnier, T. Dupuis, Predicting, measuring and tailoring the transverse thermal conductivity of composites from polymer and metal, *Int. J. Thermophysics*, 24-3 (2003), 771-784.
- [2] S. Lu, Effective conductivities of aligned spheroid dispersion estimated by an equivalent inclusion model, *J. Applied Phys.*, 84, (1998), 2647-2655.
- [3] Y. Benveniste, T. Miloh, Effective thermal conductivity of composites with imperfect thermal contact at constituent interfaces, *Int. J. Engng Sci.*, 24 (1986), 1537-1532.
- [4] D. Hasselman, L. Johnson, 1987, "Effective conductivity of composites with interfacial thermal resistance", *J. Composite Materials*, 21, pp. 508-515
- [5] B. Garnier, T. Dupuis, J. Gilles, J.P. Bardon, F. Danes, Thermal contact resistance between matrix and particle in composite materials, *Proc. 12<sup>th</sup> Int. Heat transfer Conf.*, Grenoble/ France 2002, 4<sup>th</sup> vol. ed. Taine J., eds, Elsevier, Paris, 9-14.
- [6] S. Torquato, *Random heterogeneous Materials*, Springer New York (2001).
- [7] COMSOL Multiphysics, User's guide v3.2, 2005, <http://www.comsol.com/>
- [8] K. Lu, S. Kou, The effective thermal conductivity of porous material with spherical inclusions in tetragonal or simple cubic array, *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, 20(1993), 489-500.