

Etude numérique et expérimentale du comportement électrothermique de bandes en composite polymère conducteur.

Guillaume DROVAL^{1,2}, Patrick SALAGNAC^{1*}, Patrick GLOUANNEC¹, Jean-François FELLER², Philippe CHAUVELON¹

¹Laboratoire d'Etudes Thermiques, Energétiques et Environnement (LET2E)
Centre de recherche, BP 92116, 56321 Lorient Cedex.

²Laboratoire Polymères, Propriétés aux Interfaces & Composites (L2PIC)

Centre de recherche, BP 92116, 56321 Lorient Cedex.

* (auteur correspondant : patrick.salagnac@univ-ubs.fr)

Résumé - Cette communication concerne le comportement électrothermique de bandes extrudées en composite polymère conducteur (CPC). Deux modèles donnant accès aux champs de température et de densité de courant électrique dans le matériau soumis à une différence de potentiel sont présentés. Des études numériques et expérimentales en convection naturelle dans l'air montrent le comportement électrique et thermique d'un CPC diphasique et mettent en évidence que la conductivité thermique des CPC est un facteur limitant pour la conception d'éléments chauffants.

Nomenclature

C_p Chaleur massique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$

e épaisseur, m

\vec{E} champ électrique, $V.m^{-1}$

h hauteur, m

L longueur, m

I intensité, mA

\vec{J} densité de courant, $A.m^{-2}$

S section, m^2

t temps, s

T température, $^{\circ}C$

s section, m^2

V potentiel, V

x, y, z coordonnées spatiales, m

Symboles grecs

λ conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$

ρ masse volumique, $kg.m^{-3}$

ρ_e résistivité électrique, $\Omega.cm$

σ conductivité électrique, $S.m^{-1}$

Indices et exposants

c centre

s surface

1. Introduction

Les composites polymères conducteurs (CPC) sont obtenus en dispersant des charges conductrices électriques (particules ou fibres de carbone, de métal,...) dans une matrice isolante en polymère [1]-[2]. Au-dessus d'une certaine quantité de charge conductrice, une transition électrique « isolant-conducteur » est observée, appelée seuil de percolation. Si la teneur en charge conductrice est judicieusement choisie, c'est à dire au-dessus de cette valeur critique, différentes transitions « conducteur-isolant » peuvent être obtenues en introduisant une sollicitation telle que la température. Ce phénomène est appelé « effet CTP » (Coefficient de Température Positif).

La conductivité électrique des CPC, assurée par la percolation du réseau de particules conductrices est modifiée par la dilatation thermique, ce qui offre la possibilité d'autoréguler le courant délivré en fonction de la température et ainsi l'énergie dissipée par effet Joule. Ce

comportement électrique particulier fait que les composites polymères conducteurs ont connu un développement important dans la réalisation de systèmes de chauffage auto-régulés [3]-[5].

Les principaux inconvénients de ces matériaux sont leur faible conductivité thermique et le fort couplage existant entre certaines propriétés thermiques et électriques (conductivités). Une solution intéressante consiste à réaliser des mélanges diphasiques de polymères immiscibles en localisant des charges conductrices thermiques dans l'une des phases et des charges conductrices électriques dans l'autre [6].

Après avoir déterminé les propriétés thermophysiques de différents mélanges diphasiques, nous avons étudié le comportement électrique et thermique de bandes extrudées soumises à une différence de potentiel. Le passage du courant électrique induit un échauffement par effet Joule. Cette étude réalisée en convection naturelle permet d'appréhender l'influence des conductivités thermiques et électriques sur le comportement des CPC dans le but d'une future utilisation en tant qu'éléments chauffants.

Dans un premier temps, nous décrivons le modèle développé, prenant en compte les phénomènes thermiques de conduction, de convection et de rayonnement ainsi que la conduction électrique. Le couplage électrothermique est assuré à travers la résistivité électrique et les apports par effet Joule. Ce modèle sert à valider certaines hypothèses concernant les conditions aux limites thermiques et électriques. Dans une deuxième partie, afin d'appréhender le comportement thermique des matériaux, des travaux expérimentaux ont été menés sur des bandes extrudées. Une métrologie a été définie et mise en place afin de caractériser le comportement des bandes, de valider les développements numériques et de quantifier les performances électriques et thermiques réelles des CPC.

2. Modélisation

Les études sont menées en convection naturelle dans l'air sur des bandes en CPC de section rectangulaire disposées verticalement (figure 1). Le matériau est soumis à une différence de potentiel par le biais de deux électrodes placées aux extrémités.

2.1. Modélisation de la conduction électrique et thermique

La conduction électrique dans le matériau (supposé homogène et isotrope) est régie par l'équation de Laplace :

$$-\vec{\nabla} \cdot (\sigma \vec{\nabla} V) = 0 \quad (1)$$

Les phénomènes de conduction thermique sont donnés par l'équation de la chaleur :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (\lambda \vec{\nabla} T) + \vec{J} \cdot \vec{E} \quad (2)$$

avec $\vec{J} = \sigma \vec{E}$, $\vec{E} = -\vec{\nabla} V$ et $\sigma = \frac{s}{\rho_e L}$ (3)

Pour le type de CPC étudié, les différentes propriétés thermophysiques du matériau (σ , λ , ρ , C_p) évoluent en fonction de la température.

Le modèle mathématique représentatif du comportement électrothermique du système étudié a été développé à l'aide du code en éléments finis COMSOL® [7]. Le domaine est discrétisé en éléments triangulaires et une interpolation quadratique est utilisée pour chaque grandeur.

2.2. Conditions aux limites

Afin d'estimer l'incidence du positionnement des électrodes sur la génération des apports internes (densité de courant), des simulations ont été réalisées sur une tranche longitudinale de bande (x, y) pour différents positionnements des électrodes en cuivre. Les dimensions retenues sont $(L \times h \times e) : 100 \times 50 \times 3$ mm.

Quelles que soient la position et la taille des électrodes, la distance inter - électrode est de 100 mm et le contact électrique entre les électrodes et le CPC est supposé parfait. Par ailleurs, à la surface du matériau (interface : paroi - air) un coefficient d'échange thermique constant est utilisé ($20 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$). En exploitant les différentes symétries, la géométrie étudiée correspond au quart de la coupe longitudinale. Sur la figure 2 sont présentés la géométrie retenue pour un montage avec des électrodes de 5 mm de large et 1 mm d'épaisseur et les résultats obtenus dans trois configurations. Au niveau du point de jonction intérieur électrode - matériau, là où la densité de courant subit la plus grande variation, un maillage raffiné a été utilisé. On constate que la densité de courant n'évolue pratiquement pas selon x sur la majeure partie du domaine inter-électrodes. A environ 2,5 mm des électrodes, le profil de la densité de courant est constant dans le CPC. La configuration d'électrodes qui présente la plus grande perturbation est celle avec les électrodes appliquées sur les côtés de la bande (b et c). La simulation la plus proche de la configuration expérimentale est celle avec les électrodes encastrées (a).

En se basant sur ces résultats, dans la suite de l'étude nous avons retenu d'étudier le comportement électrothermique d'une tranche de la bande (x, z) (figure 3). La puissance générée par effet Joule dans le matériau est dissipée par convection et par rayonnement de grande longueur d'onde.

3. Expérimentation

Les tests ont été effectués sur des bandes extrudées de dix centimètres de longueur. La longueur a été choisie afin de pouvoir négliger l'incidence des connexions électriques. En ce qui concerne la section, elle est imposée par les dimensions de la filière de l'extrudeuse qui permet au plus d'obtenir une hauteur de 50 mm et une épaisseur d'environ 3 mm. Avant leur utilisation, les bandes sont chauffées en étuve à 150°C pendant 1 heure, après quoi on procède à un refroidissement lent jusqu'à la température de cristallisation. Cette opération permet de contrôler la structure cristalline et ainsi de s'affranchir d'éventuelles différences du taux de cristallinité issues de la mise en œuvre.

Les électrodes de cuivre sont placées à chaud afin de limiter les résistances de contact électrique ; l'intensité peut atteindre 2 Ampères. La réponse en température des matériaux est obtenue par des thermocouples de type K de diamètre $250 \mu\text{m}$ introduits par perçage. Un thermocouple est placé au centre de la bande et deux en surface (figure 4). Ces derniers affleurent la surface. L'incertitude sur la mesure de température est de $\pm 1,5^\circ\text{C}$. La température de l'air est mesurée en différents points, par des thermocouples. Les températures, la tension et l'intensité sont relevées en fonction du temps par un système d'acquisition. En parallèle, lors de certains essais des relevés du champ des températures ont été effectués par thermographie infrarouge.

Lors des tests, la bande est soumise à des paliers de tension croissant et décroissant. La différence de potentiel maximale appliquée est choisie afin que la température du matériau étudié ne dépasse pas 110°C . D'autre part, la durée d'un palier est suffisamment longue pour permettre l'établissement du régime stationnaire.

4. Résultats et discussion

Les composites polymères conducteurs étudiés sont composés de deux phases immiscibles (Tableau 1). La phase électrique PEhd-NC possède une matrice en polyéthylène haute densité (PEhd) chargée en noir de carbone (NC). La seconde phase, quant à elle, est composée d'une matrice en polystyrène syndiotatique (PSs) dans laquelle ont été introduits des charges conductrices thermiques (Al_2O_3 ou BN). L'ajout de charges thermiques permet d'améliorer la conductivité thermique du CPC.

Les évolutions en fonction de la température de la conductivité thermique et de la conductivité électrique des différents CPC sont données sur la figure 5.

Nom	Formulation	λ (\hat{a} 50°C) $W.m^{-1}.K^{-1}$	L mm	h mm	e mm
CPC1	PSs 53%/(PEhd-23% NC) 47%	0,33	101,3	39,75	2,9
CPC2	(PSs 28% Al_2O_3) 60%/(PEhd 23% NC) 40%	0,55	100,0	47,1	3,2
CPC3	(PSs 33% BN) 63%/(PEhd 23% NC) 37%	0,60	102,5	47,0	2,5

Tableau 1 : Formulations, propriétés et dimensions des bandes en CPC

4.1. Résultats expérimentaux

La figure 6 présente les réponses en température et en intensité électrique d'un essai réalisé sur le matériau CPC1. Les tracés des températures de surface et d'air correspondent aux moyennes des mesures. Comme on peut le voir sur cette figure, l'effet d'auto régulation est mis en évidence par les pics d'intensité présents au début de chaque palier de tension.

La température maximum atteinte est de 93°C (au centre de la bande) lorsque la tension est de 30 V et de 90°C en surface de la bande, soit un écart de 3°C sur 1,46 mm d'épaisseur. Dans cet essai, l'écart de température reste faible du fait de la densité de puissance réduite mise en jeu (de l'ordre de 1 kW.m⁻²).

A partir de la mesure de la résistance électrique, on peut déterminer la conductivité électrique du matériau en fonction de la température moyenne de la bande. Comme le montre la figure 5, la conductivité électrique décroît d'une façon importante avec la température. L'incertitude sur cette mesure de la conductivité électrique est estimée à 9%.

4.2. Simulations

La figure 7 donne les profils verticaux des températures obtenues à partir du modèle 2D, au centre et en surface de la bande dans le cas du régime permanent pour une tension appliquée de 30 V. Sur cette même figure, sont reportées les températures mesurées par les thermocouples en respectant leur positionnement selon la hauteur. On constate que les valeurs expérimentales sont légèrement en dessous de la simulation. Ces écarts sont tout à fait acceptables par rapport aux hypothèses retenues pour le modèle, aux différentes incertitudes liées à la détermination des paramètres thermophysiques et aux mesures faites sur les bandes. Les températures moyennes obtenues en intégrant les températures sur la hauteur de la bande sont respectivement de 96 et 93,5°C au centre et en surface de la bande. Comme on peut le constater, ces températures sont proches des valeurs expérimentales. A titre indicatif, nous avons tracé les profils de température obtenus pour une conductivité électrique diminuée de 5%. On constate la forte incidence de ce paramètre.

Les essais présentés correspondent à des densités de puissance dissipées relativement faibles ($< 1 \text{ kW.m}^{-2}$). Le modèle est exploité afin d'extrapoler nos résultats à des densités de puissance plus élevées. La figure 8 donne les écarts de température moyens entre le centre et la surface de la bande en fonction de la densité de flux dissipée pour deux épaisseurs de bandes (2 et 3 mm) et pour différentes valeurs de la conductivité thermique. L'augmentation des apports internes est obtenue en agissant sur la tension appliquée. Afin de ne pas dépasser la température de 100°C pour le matériau le coefficient d'échange thermique surfacique est modifié en conséquence. La température d'air est de 20°C . Cette figure met en évidence la problématique de l'ensemble de ce travail. Ainsi pour une densité de puissance de 20 kW.m^{-2} , l'écart de température obtenu avec le matériau de faible conductivité thermique ($0,33 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) est de 46°C . Pour diminuer cet écart, deux solutions sont envisageables : réduire l'épaisseur et/ou augmenter la conductivité thermique du matériau.

5. Conclusion

Un modèle représentatif du comportement électrique et thermique de bandes en composite polymère conducteur soumises à une différence de potentiel électrique a été présenté. Du fait de la variation de la résistivité électrique du matériau avec la température, on a pu noter que la densité de courant n'était pas constante dans l'épaisseur du CPC. La dissipation de puissance électrique est donc plus importante en surface, là où la température est la plus basse et la conductivité électrique est la plus élevée. La simulation a mis en évidence la présence de forts gradients de température au sein du matériau et la nécessité d'augmenter la conductivité thermique du milieu afin de dissiper au mieux l'énergie produite par effet Joule.

Références

- [1] J.-C. Dubois, P. Michel, Polymères conducteurs. *Techniques de l'ingénieur*, E1860 (1993).
- [2] E. S. Sichel, Carbon black-Polymer Composites: *The Physics of Electrically Conducting Composites*, Marcel Dekker Inc., New York, Basel, 212 p. (1982).
- [3] C. Ageorges, L. Ye, M. Hou, Experimental Investigation of the Resistance Welding for Thermoplastic-matrix Composites. Part I: Heating Element and Heat Transfer. *Composites Science and Technology*, 60-7 (2000), 1027-1039.
- [4] J.-F. Feller, P. Chauvelon, I. Linossier, P. Glouannec, Characterization of Electrical and Thermal Properties of Extruded Tapes of Thermoplastic Conductive Polymer Composites (CPC), *Polymer Testing*, 22-7(2003), 831-837.
- [5] G. Droval, P. Glouannec P., J.-F. Feller, P. Salagnac, Simulation of electrical and thermal behavior of diphasic conductive polymer composites heating elements. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, 19-3 (2005), 375-381.
- [6] G. Droval, Elaboration et caractérisation de composites polymères conducteurs électriques et thermiques, *Thèse de Doctorat de l'Université de Bretagne-Sud*, 185 p. (2006).
- [7] COMSOL Multiphysics User's Guide (2005).

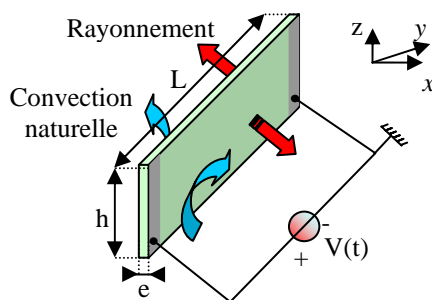


Figure 1 : Descriptif du dispositif

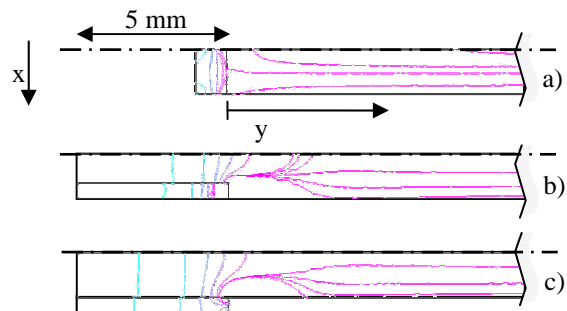


Figure 2 : Lignes de courant dans l'épaisseur de la bande

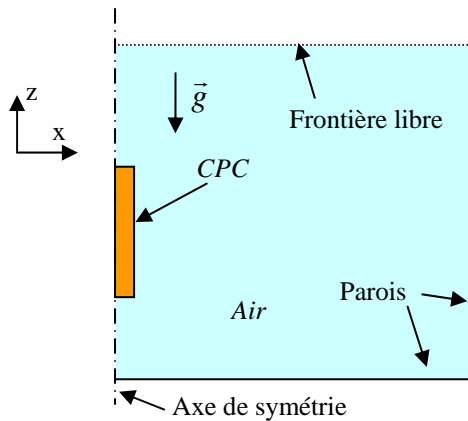


Figure 3 : Schéma de la section de la bande modélisée

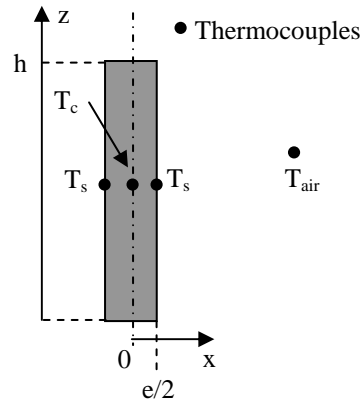


Figure 4 : Positionnement des capteurs

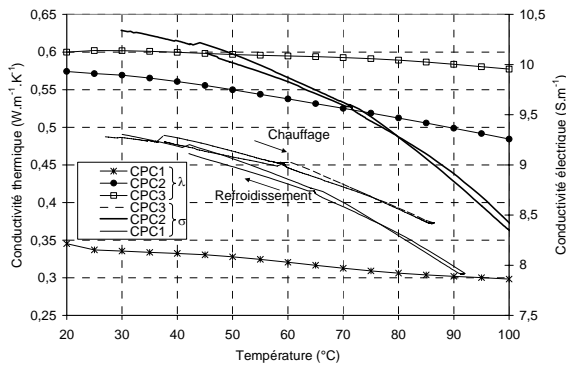


Figure 5 : Conductivités thermiques et électriques en fonction de la température

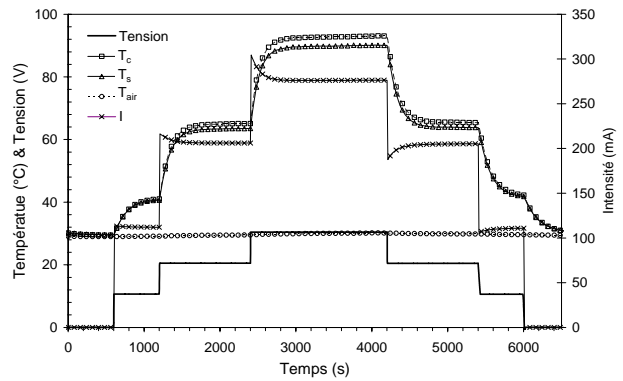


Figure 6 : Réponses en température et en intensité électrique du CPC1

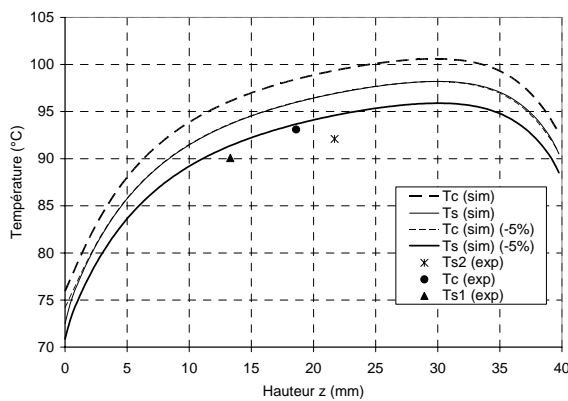


Figure 7 : Evolutions simulées de la température sur la hauteur de la bande (sans et avec une diminution de 5% de la conductivité électrique)

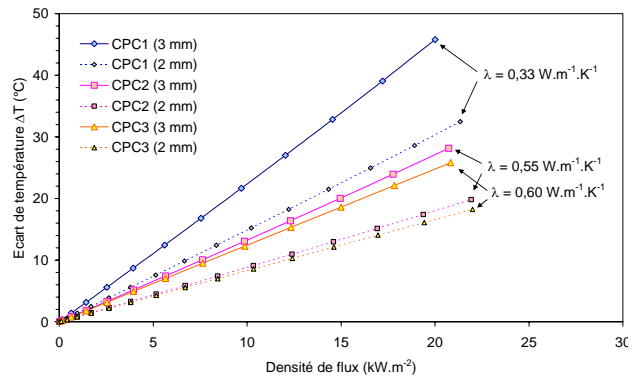


Figure 8 : Evolution de l'écart de température (entre le centre et la surface de la bande) en fonction de la densité de flux pour une conductivité thermique constante