

Conductivité thermique d'un composite polymère fibres de verre courtes : mesure et modélisation

Ronan LE GOFF¹, Nicolas BOYARD², Didier DELAUNAY*², Vincent SOBOTKA²

1 Pôle Européen de Plasturgie, 2 rue Pierre et Marie Curie, F- 01100 BELLIGNAT France.

2 Université de Nantes, Nantes Atlantique Universités, CNRS, Laboratoire de Thermocinétique de Nantes, UMR 6607, La Chantrerie, rue Christian Pauc, BP 50609, 44306 Nantes cedex 3 – France

*(auteur correspondant : didier.delaunay@univ-nantes.fr)

Résumé- Nous présentons pour plusieurs taux de fibres des résultats sur le tenseur de conductivité de l'IXEF, constitué d'une matrice de polyamide associée à des fibres de verre. Lors de l'injection, les fibres s'orientent localement sous l'influence de l'écoulement, et ces matériaux sont anisotropes. Des mesures ont été effectuées dans la plage 20°C-250°C, allant du solide au fondu. Un modèle conçu pour les propriétés mécaniques effectives associé au tenseur d'orientation local a permis de déterminer la conductivité effective des pièces.

Nomenclature

a_{ij}	matrice d'orientation	I	tenseur identité
T	température, K	λ_m	conductivité thermique de la matrice, W.m ⁻¹ .K ⁻¹
S_{ij}	tenseur d'Eshelby	λ_f	conductivité thermique des fibres, W.m ⁻¹ .K ⁻¹

1. Introduction

Les composites de polymères thermoplastiques associés à des fibres courtes millimétriques sont de plus en plus utilisés dans les applications. En effet ils conjuguent des propriétés mécaniques excellentes (résistance à la rupture, haut module) à la possibilité d'assemblage soudé. Ils sont le plus fréquemment mis en œuvre par injection, ce qui permet des cadences élevées. Du fait de leur prix et de leurs performances, ils sont utilisés pour des pièces techniques (sous capot moteur par exemple). Leurs propriétés, et notamment la conductivité thermique doivent être connues avec précision. Lors de l'injection, les fibres s'orientent sous l'influence de l'écoulement, et ces matériaux sont anisotropes.

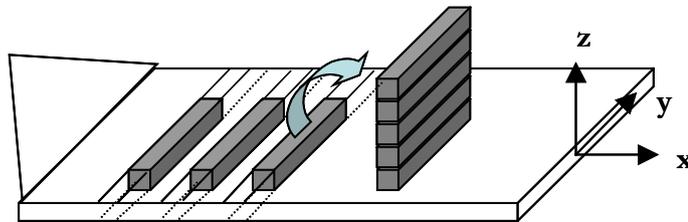
Nous présentons les résultats de mesures du tenseur de conductivité de l'IXEF, constitué d'une matrice de polyamide associée à des fibres de verre pour un taux en masse allant de zéro à 50%. Des mesures ont été effectuées dans la plage 20°C-250°C, allant du solide au fondu. Différentes techniques ont été utilisées pour mesurer la conductivité. Un modèle conçu pour les propriétés mécaniques effectives [1] a été utilisé. Associé au tenseur d'orientation local il a permis de déterminer la conductivité effective des pièces. Les résultats expérimentaux sont comparés au modèle.

2. Techniques de mesure et résultats

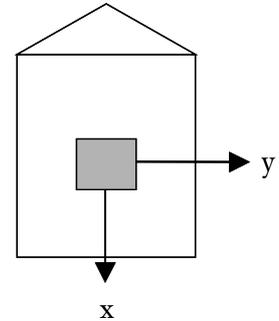
2.1 Plaque chaude gardée et moule « conductivimètre »

Les mesures de conductivité thermique sur plaque chaude gardée ont été réalisées sur deux types de pièces. Le premier type de pièce est injecté dans un moule de plaque appelé SWIM décrit dans la référence [2]. Le second type de pièce est obtenu grâce au moule conductivimètre [3]. Les échantillons, de forme carrée de 15 mm de côté, sont découpés dans

le centre des pièces. La figure 1 montre comment nous avons procédé pour découper les échantillons. Ceci n'a pas posé de problème pour l'échantillon servant à la mesure dans la direction transverse à l'écoulement. En revanche, cela a été plus délicat pour l'échantillon servant à la mesure dans la direction de l'écoulement. Il a été construit en superposant et en collant plusieurs lamelles de la pièce découpées dans la largeur puis adapté à la taille de la cellule de mesure.



Découpe d'un échantillon servant pour le mesure de la conductivité thermique dans la direction x



Découpe d'un échantillon pour la mesure de la conductivité thermique dans la direction z

Figure 1. Méthode de découpe des échantillons dans une pièce SWIM

Le moule conductivimètre est constitué d'une plaque centrale métallique en forme de disque autour de laquelle on surmoule deux disques de 3mm d'épaisseur. La plaque centrale est équipée d'un thermocouple en son centre permettant d'avoir accès à la température au cœur de l'échantillon. Le matériau étudié est injecté dans le moule chaud, le refroidissement étant effectué une fois la cavité remplie. La description détaillée du dispositif et de son fonctionnement peut être trouvée dans la référence [3]. La conductivité thermique *dans l'épaisseur du disque* est recherchée par méthode d'estimation de paramètre sous la forme d'un vecteur à JM composantes ($\lambda = [\lambda_1, \dots, \lambda_j, \dots, \lambda_{JM}]^T$) associé à des points en température. Notons bien que l'on n'obtient par cette méthode *que la conductivité transverse*. Une analyse de sensibilité permet de donner un intervalle de confiance sur les valeurs obtenues et de fixer le domaine « d'identifiabilité ».

2.2. Résultats en plaque chaude gardée.

Le tableau 1 présente les résultats obtenus sur des pièces « SWIM » pour les 3 grades à une même température (25°C), dans les directions x et z des pièces.

Conductivité thermique [W.m ⁻¹ .K ⁻¹]	Ratio de fibres (entre parenthèse : grade)		
	0 %	30 %(1002)	50 %(1022)
λ_{xx}	0,265	0,335	0,44
λ_{zz}	0,265	0,32	0,39

Tableau 1. Conductivité thermique de l'IXEF mesurée dans la direction de l'injection et dans la direction transverse à l'injection

Comme attendu, la conductivité thermique augmente avec le ratio de fibres du matériau composite. En effet, la conductivité thermique pour le verre E est de $1,1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ce qui est plus élevé que la conductivité de la matrice. De plus, la conductivité transverse au flux de matière est plus faible que la conductivité mesurée selon l'axe x. Ces résultats sont cohérents avec l'orientation des fibres qui sont orientées essentiellement dans le plan de l'écoulement. Leur influence est donc moins importante sur la conductivité transverse. Nous avons mesuré en plaque chaude la conductivité thermique de deux grades de l'IXEF en fonction de la température sur des pièces injectées dans le moule conductivimètre. Les échantillons ont été découpés dans les pièces et les résultats obtenus sont rapportés dans le tableau 2. Ils montrent que la conductivité thermique λ_{zz} augmente avec la température que ce soit pour la matrice ou pour l'IXEF avec 30 % de fibres (IXEF 1002). Les résultats sont cohérents avec les mesures sur la pièce SWIM donnés dans le tableau (1).

Température [°C]	Ratio de fibres (grade)	
	0 %	30 %(1002)
30	0,27	0,315
45	0,28	0,325
90	0,29	0,34

Tableau 2. Conductivité thermique transverse de l'IXEF en fonction de la température

2.3 Résultats avec le moule conductivimètre

Les résultats de l'estimation de la conductivité thermique λ_{zz} de l'IXEF 1002 (30% de fibres) sont présentés sur la figure 3. Elle est logiquement supérieure à celle calculée sur le matériau sans fibres de verre. De plus, les résultats sont conformes aux valeurs mesurées sur la plaque chaude gardée. Une légère baisse est observée vers 130 °C qui peut s'expliquer par l'influence de la transition vitreuse.

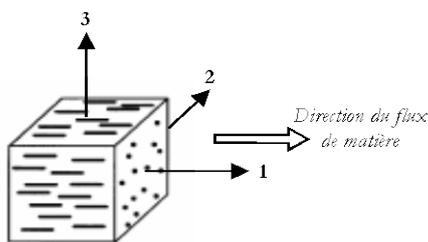


Figure 2 : Repère dans lequel sont exprimés les tenseurs

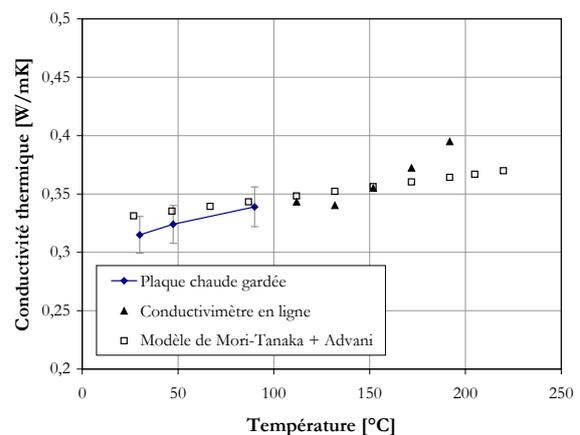


Figure 3 : Résultats de l'estimation et comparaison avec les mesures effectuées en plaque chaude gardée pour l'IXEF 1002(30% de fibres)

3. Modèle de prédiction de la conductivité des composites à fibres courtes

Le modèle de conductivité thermique est basé sur la mesure de la distribution d'orientation réalisée par D. Dray [4] et sur les valeurs de conductivité mesurées sur plaque chaude gardée et obtenues grâce au moule conductivimètre. Le modèle est issu de résultats de Mori et Tanaka [1], adaptés à la conductivité thermique par, tout d'abord, Hatta et Taya [5], puis par Chen et Wang [6]. Ce modèle permet de prédire la conductivité thermique d'un composite à fibres courtes lorsque celles-ci sont unidirectionnelles. Le tenseur de conductivité thermique est donné dans le repère de la figure (2) par la formule (1) :

$$\lambda^{UD} = \lambda_m \left[I + f \cdot B \cdot (I + f \cdot B \cdot (S - I))^{-1} \right]^{-1} \quad (1)$$

Dans cette formule, λ_m est la conductivité thermique de la matrice, f est le ratio de fibres du composite, et S est le tenseur d'Eshelby qui s'exprime en fonction du facteur d'aspect s de l'inclusion. Il est donné sur le tableau 3. En désignant par λ_f la conductivité thermique des fibres, le tenseur B est donné par $(1 - \lambda_f/\lambda_m) (I + S (\lambda_f/\lambda_m - 1))^{-1}$.

S_{ij}	Fibre
$S_{22} = S_{11}$	$\frac{s}{2(s^2 - 1)^{\frac{3}{2}}} \left[s(s^2 - 1)^{\frac{1}{2}} - \cosh^{-1} s \right]$
S_{33}	$1 - 2S_{11}$

Tableau 3. Tenseur d'Eshelby pour une fibre en fonction de son facteur d'aspect s .

La distribution d'orientation est prise en compte par un tenseur a_{ij} selon l'expression proposée par Advani et al. [7]. Le tenseur de conductivité thermique en un point M du composite s'écrit alors selon la formule (2) :

$$\lambda_{ij}(M) = K_1 a_{ij}(M) + K_2 \delta_{ij} \quad (2)$$

Dans cette formule, δ_{ij} est le tenseur de Kronecker, K_1 et K_2 sont des scalaires dépendants des composantes du tenseur de conductivité du composite à fibres unidirectionnelles. Pour les déterminer, nous choisissons le cas particulier où les fibres sont toutes orientées selon la direction 1 de la figure (2). L'équation revient alors à deux équations à deux inconnues, K_1 et K_2 . Nous obtenons alors :

$$\begin{aligned} K_1 &= \lambda_{11}^{UD} - \lambda_{33}^{UD} \\ K_2 &= \lambda_{33}^{UD} \end{aligned} \quad (3)$$

Afin de valider le modèle à température constante (30°C), nous comparons dans le tableau (4) les valeurs obtenues avec celles mesurées en plaque chaude gardée dans la direction de l'injection et dans la direction transverse à l'injection, pour deux grades de l'IXEF : 1002 (30% de fibres) et 1022 (50% de fibres).

Conductivité thermique [W/mK]	λ_{xx}		λ_{zz}	
	30%	50%	30%	50%
Matrice	0,268			
Fibres	1,1			
Valeur mesurée	0,34	0,44	0,322	0,393
Valeur calculée	0,353	0,450	0,326	0,395
Erreur	5.4 %	1.6 %	1,2 %	0,05 %

Tableau 4. Comparaison des résultats du modèle avec les mesures effectuées en plaque chaude gardée

L'erreur sur la conductivité transverse au flux de matière λ_{zz} est très faible. En effet, dans cette direction, l'influence de l'orientation est quasiment inexistante car les fibres sont majoritairement orientées dans le plan de l'injection. Nous avons tenu compte des orientations locales des fibres en discrétisant l'épaisseur en trois parties égales car, comme le montre la figure (4), au cœur de la pièce, l'orientation des fibres se fait préférentiellement perpendiculairement à l'écoulement, alors qu'aux bords de la pièce, l'orientation se fait préférentiellement dans le sens de l'écoulement. Ceci est confirmé par les tenseurs d'orientation de l'IXEF 1002 (30% de fibres) mesurés par Dray [4] indiqués sur la figure (4).

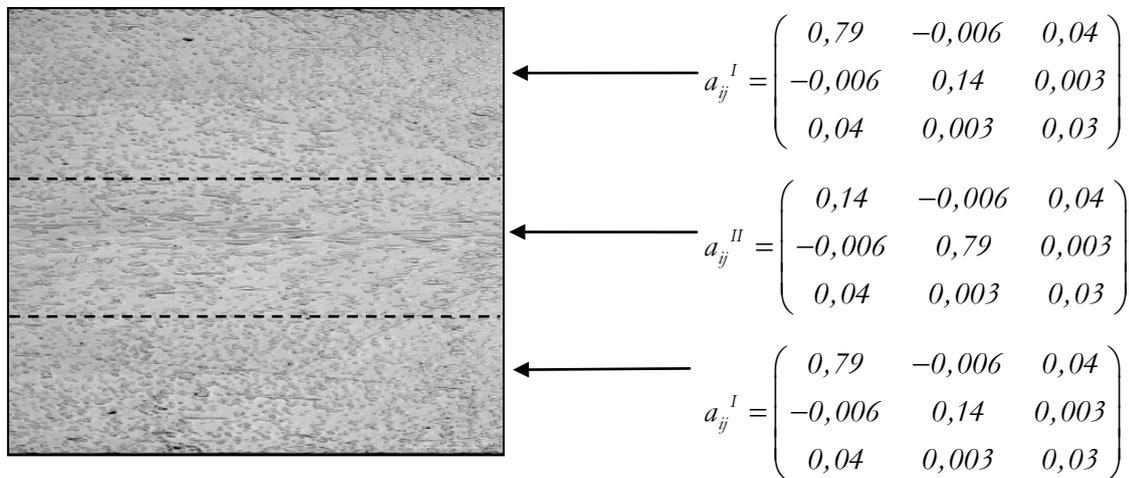


Figure 4. Vue d'une coupe dans l'épaisseur perpendiculaire au flux de matière – Expression des tenseurs d'orientation correspondant aux différentes couches

Pour le calcul de la conductivité thermique, les trois parties sont considérées en parallèle ou en série selon l'axe considéré, ce qui donne l'expression (4) :

$$\lambda = \frac{2}{3}(K_1 \cdot a^I + I \cdot K_2) + \frac{1}{3}(K_1 \cdot a^{II} + I \cdot K_2) \quad (4)$$

Le tableau 4 montre les résultats du calcul de la conductivité axiale effective λ_{xx} avec cette méthode. Les résultats permettent de valider le modèle pour une température de 30 °C.

Pour valider le modèle de conductivité thermique en fonction de la température, nous utilisons les résultats obtenus sur l'IXEF 1002 grâce au conductivimètre en ligne. Il a été

utilisé également pour la matrice en fondu et on a obtenu une valeur de $0.238 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Elle a été mesurée de même en solide et on a obtenu $\lambda_{\text{ms}}(T) = 1,46.10^{-4}.T+0,27$ avec T en °C. Celle des fibres E est donnée par la relation $\lambda_{\text{fibres}} = 1.1 + 1.29.10^{-3} T$, avec T en °C [8].

La validation ne peut se faire qu'en comparant les conductivités thermiques évaluées dans l'épaisseur de la pièce car nous n'avons pas fait de mesure de conductivité en fonction de la température dans les autres directions. On montre figure (3) la conductivité thermique calculée à partir du modèle comparée aux points expérimentaux. Les résultats sont acceptables car le modèle prédit la conductivité thermique de l'IXEF 1002 avec une erreur par rapport à la mesure qui reste de l'ordre de grandeur de l'incertitude.

4. Conclusion

Cette première validation montre que le modèle de Mori et Tanaka [1] combiné aux tenseurs d'orientation locaux donne une estimation correcte du tenseur de conductivité effective d'une pièce injectée. Cependant, d'autres campagnes de mesures nous permettraient de vérifier la qualité de ce modèle pour la prédiction de la conductivité dans la direction préférentielle des fibres en fonction de la température. De même l'influence de la finesse de discrétisation reste à préciser, afin de déterminer le volume élémentaire représentatif. Enfin, il serait intéressant de tester les limites de ce modèle pour un matériau composite ayant un contraste plus important entre les conductivités thermiques de la matrice et celle des fibres. L'influence des transferts radiatifs serait également à examiner à haute température.

Références

- [1] T.Mori, K.Tanaka, Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions, *Acta Metall*, 21 (1973), 571-574.
- [2] D.Delaunay, Ph. Le Bot, R. Fulchiron, J.F. Luyé, G. Régnier, Nature of contact between polymer and mold in injection molding, Part I, *Polymer Engineering and Science*, vol40, No.7 (2000), 1682-1691.
- [3] R. LE Goff, D. Delaunay, N. Boyard, Y. Jarny, T. Jurkowski, R. Deterre, On-line temperature measurements for polymer thermal conductivity estimation under injection molding conditions, *IJHMT*, 52 (2009), 1453-1450
- [4] D.Dray, Prédiction des propriétés thermo-élastiques d'un composite injecté et chargé de fibres courtes, *Thèse de doctorat, Ecole Supérieure d'Arts et Métiers, Paris*, (2006)
- [5] H.Hatta, M.Taya, Effective thermal conductivity of a misoriented short fiber composite, *Journal of Applied Physics*, vol.57, n°8 (1985), 2478-2486
- [6] C. Chen, Y.Wang, Effective thermal conductivity of misoriented short-fiber reinforced thermoplastics, *Mechanics of materials*, vol. 23 (1996), 217-228
- [7] S.G. Advani, C.L. Tucker, The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites, *Journal of Rheology*, Vol.31, n°8 (1987), , 751-784
- [8] L. van der Tempel, Thermal Conductivity of a Glass: II. The Empirical Model, *Glass Physics and Chemistry*, vol. 28, n°3, (2002), 147-152

Remerciements :

Ce travail a été réalisé dans le cadre du programme FISH, et nous remercions nos partenaires des sociétés Legrand, Moldflow et Solvay, ainsi que nos collègues de L'ENSAM de Paris et de l'Université de Lyon 1.