

Résistance thermique d'interface entre inclusion métallique et matrice dans les composites à matrice polymère

Eric CHAPELLE*, Bertrand GARNIER, Brahim BOUROUGA

Laboratoire de Thermocinétique de l'Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes

Rue C. Pauc - BP50609 - 44306 Nantes cedex 03

*(auteur correspondant : eric.chapelle@univ-nantes.fr)

Résumé – Un des principaux facteurs qui limitent l'augmentation de la conductivité effective des polymères chargés de particules conductrices est la résistance thermique d'interface inclusion/matrice. Ainsi en se plaçant dans le cas de particules de type fibre métallique, des mesures de résistances d'interface ont été réalisées entre des fils métalliques et une matrice polymère. Pour des diamètres de fil de nickel compris entre 26,9 et 122,9 μm et des températures moyennes entre 25 et 50°C, la résistance d'interface nickel/ époxy est comprise entre 0,38.10⁻⁵ et 1,63.10⁻⁵ m².K.W⁻¹. Elle augmente avec l'accroissement du niveau de température ou du diamètre des fils.

Nomenclature

a	diffusivité thermique, $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$	<i>Symboles grecs</i>	
c	chaleur spécifique, $\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$	α_m	coefficient thermique de dilatation, K^{-1}
r	rayon du fil, m	δ	résidu, °C
L	longueur du fil, m	ε	erreur avec interv. de conf. à 95%, %
R_i	résistance therm. d'interface, $\text{m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$	ϕ	diamètre du fil, m
V	tension de déséquilibre, V	λ	conductivité thermique, $\text{W}.\text{m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
U	tension d'alimentation, V	ρ	masse volumique, $\text{kg}.\text{m}^{-3}$
P_0	puissance électrique, W	ν	coefficient de Poisson
p	paramètre de Laplace	θ	température complexe, °C
I_j, K_j	fonctions de Bessel d'ordre j	<i>Indices et exposants</i>	
Z	impédance complexe, $\text{K}.\text{W}^{-1}$	Ni	fil de nickel
u	déplacement, m	ep	matrice époxy

1. Introduction

La conductivité effective de polymères chargés et bons conducteurs de chaleur dépend d'un grand nombre de facteurs tels que les propriétés des deux phases, la microstructure du matériau, les conditions de fabrication et également le contact à l'interface inclusion/matrice. L'influence de l'interface est d'autant plus importante que la conductivité effective du composite est élevée. Dans les composites à matrice polymère, la présence de la résistance thermique d'interface R_i , est généralement due à la dilatation thermique différentielle et à une faible adhésion entre les phases.

Dans la littérature, on retrouve très peu de travaux portant sur la résistance d'interface inclusion/matrice en raison notamment de la difficulté de telles mesures liée à la taille des inclusions (de l'ordre de la dizaine à quelques centaines de microns). Les rares mesures de R_i sont principalement déduites de mesures de conductivité effective en connaissant la microstructure du composite. Par ailleurs, les progrès actuels dans les microscopes thermiques (SthM, AFM avec module thermique...) ne permettent pas d'obtenir de telles

mesures, souvent en raison de la présence de la résistance de contact parasite sonde/échantillon.

Dans le travail présenté ici, il s'agit de caractériser la résistance thermique d'interface entre des fils de nickel (correspondant à des inclusions de type fibre) et une matrice en époxy. La technique utilisée est dérivée de la méthode du fil chaud couplée à une procédure d'estimation de paramètres. Le second objectif est d'étudier l'effet de la température moyenne et du diamètre des fils sur les valeurs de R_i . En effet, dans les modèles de prédiction de la conductivité effective, on considère souvent que la résistance d'interface inclusion/matrice est indépendante de la taille des inclusions et de la température, ceci résultant de l'absence de mesures de R_i .

2. Principe de la méthode de mesure de R_i inclusion/matrice

Des échantillons de composites ont été réalisés à partir de fils de nickel de différents diamètres : 26,9 , 55,8 et 122,9 μm (un fil représentant une inclusion) tendus dans une matrice en résine époxy (Araldite LY5052+Aradur 5052). Afin de réaliser des mesures de R_i entre inclusion et matrice, chaque échantillon est placé dans un pont de Wheatstone, un double échelon de tension assurant le chauffage du fil de nickel par effet Joule. Le dispositif permet d'enregistrer la température moyenne T du fil et la puissance électrique via deux mesures de tension : les tensions de déséquilibre V et d'alimentation U du pont de Wheatstone. L'étalonnage en température, c'est-à-dire la relation qui relie T au rapport V/U , est réalisé en alimentant le circuit avec une tension U faible et en faisant varier la température de l'échantillon entre 20 et 50°C à l'aide d'une enceinte alimentée par un bain thermostaté.

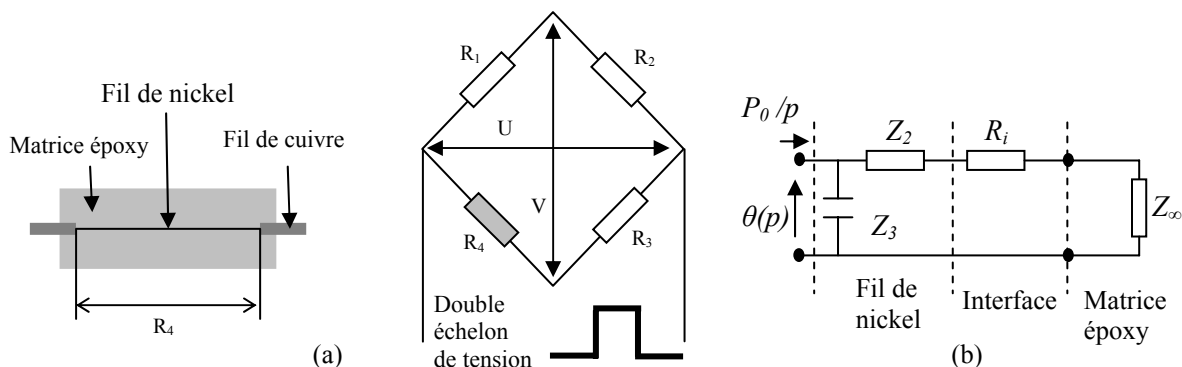


Figure 1 : (a) Principe de mesure de R_i , fil de nickel/matrice époxy et (b) modèle thermique

3. Modèle thermique

Afin d'obtenir R_i inclusion/matrice à partir des mesures de température et de puissance électrique, il est nécessaire d'utiliser un modèle qui décrit les transferts thermiques au sein des échantillons. Il s'agit d'estimer la température moyenne du fil en tenant compte du contact imparfait et des propriétés des deux milieux. Les fils de nickel d'un diamètre de 26,9 , 55,8 et 122,9 μm ont une longueur respective de 25, 50 et 161mm, le ratio longueur sur diamètre dépassant 1000, l'hypothèse de transfert thermique 1D a été retenue. Une condition de type semi-infini a été considérée au loin dans le polymère. En effet, la durée de chauffage n'étant que de 10ms, la longueur de diffusion dans le polymère ($\approx 30\mu\text{m}$) est bien inférieure au rayon du cylindre de polymère ($\approx 8\text{mm}$). La figure 1b représente le schéma correspondant à

l'ensemble du système thermique. En utilisant la méthode des quadripôles, la température moyenne du fil de nickel θ peut s'écrire dans l'espace de Laplace sous la forme [2] :

$$\theta(p, R_i) = \frac{P_0}{p} \cdot \frac{1}{\frac{1}{Z_3} + \frac{1}{Z_2 + \frac{R_i}{2\pi L r} + Z_\infty}} \quad (1)$$

$$\text{avec : } Z_2 = \frac{I_0(s)}{2\pi\lambda_{Ni}\cdot L\cdot s\cdot I_1(s)} - \frac{1}{\rho_{Ni}\cdot c_{Ni}\cdot \pi\cdot r^2\cdot L\cdot p}, \quad Z_3 = \frac{1}{\rho_{Ni}\cdot c_{Ni}\cdot \pi\cdot r^2\cdot L\cdot p},$$

$$Z_\infty = \frac{1}{2\pi\lambda_{ep}\cdot L} \frac{K_0(s')}{s'\cdot K_1(s')}, \quad s = r\sqrt{\frac{p}{a_{Ni}}} \quad \text{et} \quad s' = r\sqrt{\frac{p}{a_{ep}}}$$

où p est la variable de Laplace, r et L sont respectivement le rayon et la longueur du fil, P_0 est la puissance électrique dissipée dans le fil, a_{Ni} et a_{ep} sont les diffusivités thermiques, λ_{Ni} et λ_{ep} les conductivités thermiques et c_{Ni} et c_{ep} les chaleurs spécifiques respectivement du nickel (Ni) et de l'époxy (ep). L'évolution de la température moyenne T du fil est obtenue par la méthode d'inversion numérique de Gaver-Stefest [2] à partir de la température calculée dans l'espace de Laplace $\theta(p, R_i)$, éq.(1).

4. Etude de sensibilité

Le modèle thermique décrit par l'équation (1) a permis l'estimation simultanée des 2 paramètres R_i et λ_{ep} à partir des mesures de la température moyenne T du fil de nickel et en utilisant la méthode du simplexe. Il a de plus permis d'étudier la sensibilité réduite de T aux paramètres estimés, R_i et λ_{ep} (figure 2).

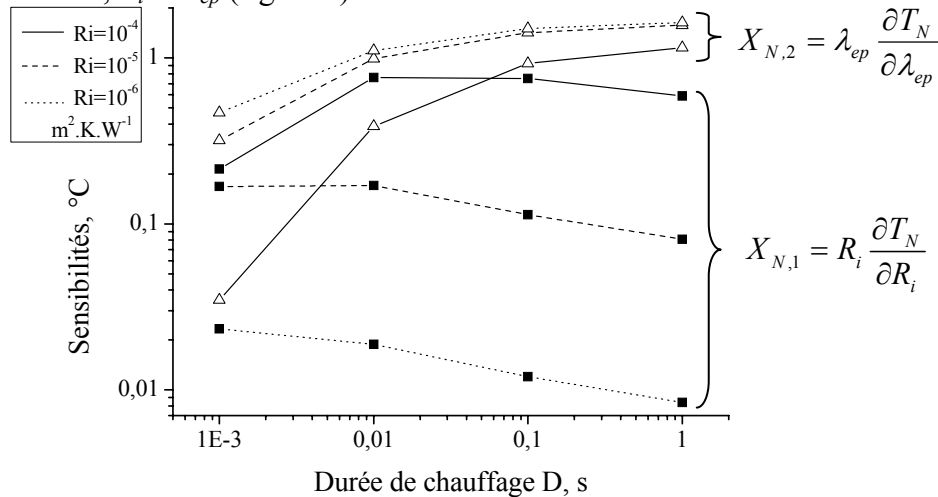


Figure 2 : Coefficients de sensibilité à R_i et λ_{ep} (fil $26.9\mu m$) – $D=n\cdot\Delta t$ avec $1 < n < N$

La matrice de sensibilité X réduite a été calculée pour différentes durées de chauffage (de 1ms à 1s) en maintenant un saut de température ΔT_{max} de $2^\circ C$, via l'ajustement de la puissance électrique. Ce faible saut de température assure une faible variation (inférieure à 1,5%) des propriétés thermophysiques des matériaux notamment du polymère, et une résistance d'interface R_i quasi-constante. Il est intéressant de noter que les sensibilités dépendent beaucoup de la valeur de R_i , et que la sensibilité à R_i est faible comparée à celle de λ_{ep} , a fortiori pour des temps de chauffage longs. Une durée de chauffage faible permet de réduire la prééminence de λ_{ep} . Pour $R_i=10^{-5} m^2K/W$ (ordre de grandeur des R_i obtenues par la

suite), le maximum de sensibilité à R_i apparait pour une durée de chauffage de 10ms, c'est donc celle-ci qui a été utilisée lors de nos séries d'expériences.

5. Etude de reproductibilité – Erreur sur les paramètres estimés

Afin de tester la reproductibilité du dispositif de mesure de R_i , les mesures ont été répétées plusieurs fois pour trois températures initiales, 20, 35 et 50°C, et ce pour chaque diamètre de fil. Le tableau 1 rapporte les résultats pour l'échantillon avec le fil nickel de diamètre 26,9µm et pour une température initiale égale à 20°C.

Test n°	1	2	3	4	5
$\Delta T_{max} / ^\circ\text{C}$	2,09	2,09	2,07	2,11	2,08
$\lambda_{ep} / \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	0,21±0,005	0,21±0,005	0,21±0,005	0,21±0,005	0,21±0,005
$R_i / 10^{-5}\text{m}^2.\text{K.W}^{-1}$	0,40±0,1	0,39±0,1	0,37±0,1	0,37±0,1	0,37±0,1
$\delta_{RMS} / ^\circ\text{C}$	0,009	0,011	0,009	0,010	0,011

Tableau 1 : Essais de reproductibilité pour l'échantillon avec fil de 26,9µm, $T_{initiale}=20^\circ\text{C}$, $\Delta t=10\text{ms}$

Les résidus de l'estimation par la méthode inverse sont faibles, 0,01°C en moyenne pour cet échantillon, ce qui est 7 fois plus faible que la sensibilité que l'on aurait pour $D=10\text{ms}$ et $R_i = 0,4.10^{-5} \text{m}^2.\text{K.W}^{-1}$ (figure 2). Ce résultat illustre en partie les difficultés et les limites de la méthode de mesure, il ne serait pas possible de garantir la validité des résultats pour des R_i trop faibles, i.e. lorsque les résidus sont de l'ordre des coefficients de sensibilité. Dans le tableau 1, les valeurs de R_i obtenues sont très voisines. Il en est de même pour la conductivité estimée pour la résine époxy (0,21 $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) qui est très proche de la valeur fournie par ailleurs par la méthode de la plaque chaude gardée (0,224±0,06 $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$).

Dans le tableau 1 (et les suivants), les incertitudes absolues $2\sigma_{R_i}$ et $2\sigma_{\lambda_{ep}}$ sur les paramètres estimés R_i et λ_{ep} à intervalles de confiance de 95% sont issues du calcul de la matrice de variance-covariance S^{final} des paramètres estimés et des termes diagonaux (i.e. non nuls) de la matrice de variance-covariance W des erreurs expérimentales définies par [3] :

$$S^{final} = [X^T(final)W X] \text{ avec } (W)_{jj} = \left[\sigma_T^2 + \sum_k \left(\sigma_{m_k} \frac{\partial T_j}{\partial m_k} \right)^2 \right]^{-1} \quad (2)$$

où l'écart type σ_T , calculé à partir des résidus de l'estimation, est lié aux bruits de mesure de température et les écarts types σ_{m_k} sont associés aux erreurs sur les paramètres connus ($\varepsilon_{P_0} = 0,4\%$, $\varepsilon_{\phi} = 0,2\%$, $\varepsilon_{\rho_{ep}} = 1\%$, $\varepsilon_{\rho_{Ni}} = 1\%$, $\varepsilon_{\lambda_{Ni}} = 3\%$).

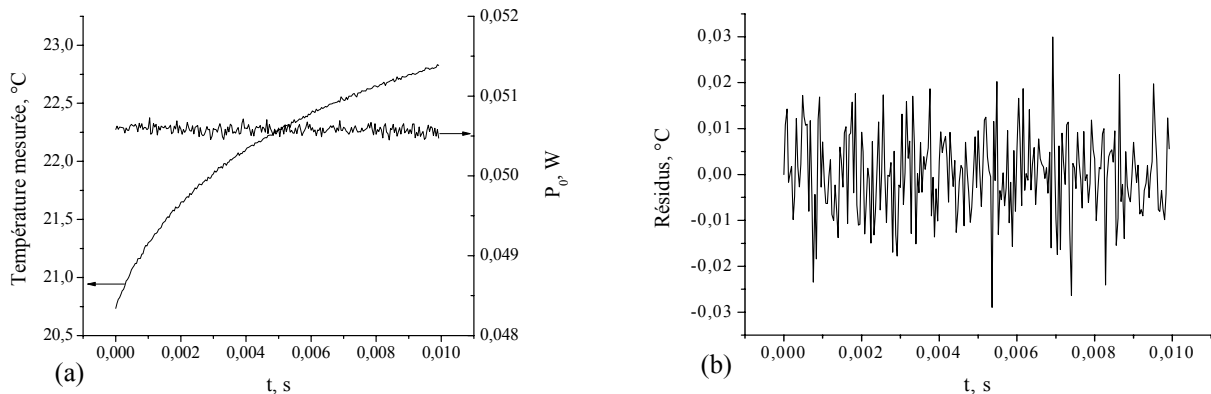


Figure 3 : (a) Température et puissance électrique mesurées et (b) résidus de température ($T_{initiale}=20^\circ\text{C}$; fil avec $\phi=26,9\mu\text{m}$,)

6. Effet de la température initiale et du diamètre des fils

Une série de 45 essais a été réalisée pour trois niveaux de température initiale et pour trois diamètres ϕ de fil de nickel. Les résultats de l'estimation des résistances d'interface sont présentés dans le tableau 2 et sur la figure 4, chaque valeur étant la moyenne de cinq mesures.

$T_{initiale}, ^\circ\text{C} \downarrow$	$\phi, \mu\text{m} \rightarrow$	26,9	55,8	122,9
20		0,38±0,10	0,57±0,13	0,87±0,13
35		0,48±0,07	0,69±0,09	1,27 ±0,13
50		0,53±0,08	0,90±0,12	1,63±0,12

Tableau 2 : Résistances d'interfaces estimées $R_i / 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$ vs. ϕ et $T_{initiale}$

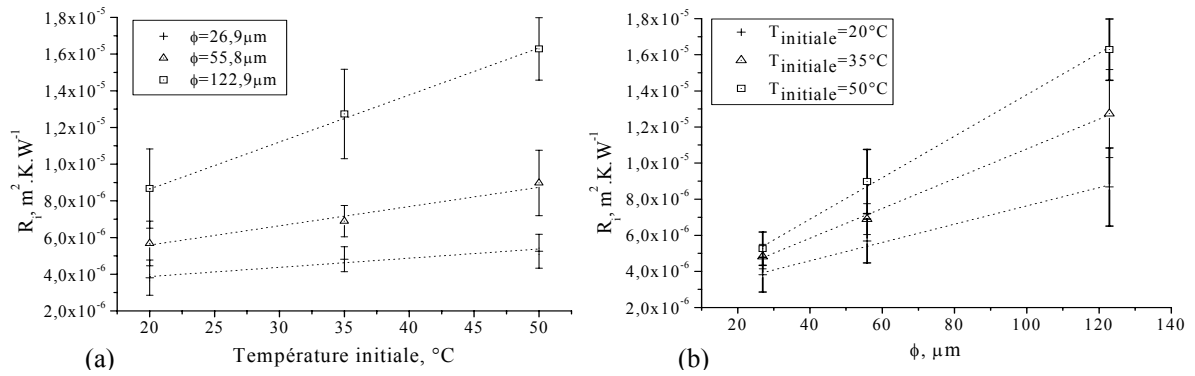


Figure 4 : Effet sur R_i de (a) la température initiale et (b) du diamètre des fils

Il apparaît ici que R_i dépend de la température initiale de manière linéaire pour la plage de température étudiée, l'augmentation étant d'autant plus forte que le diamètre du fil de nickel est grand (figure 4a). La dépendance de R_i à ϕ est également linéaire (figure 4b). Lorsque la température augmente de 20 à 50°C, les valeurs de R_i sont multipliées par un facteur 2,2, 2,6 et 3,1 respectivement pour les fils d'un diamètre de 26,9, 55,8 et 122,9 μm . Par ailleurs, les pentes dR_i/dT des dépendances de R_i en fonction de la température T sont égales à 0,48, 1,1 et $2,54 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ pour les fils d'un diamètre de 26,9, 55,8 et 122,9 μm (figure 4a).

Pour interpréter ces résultats de dépendance de la résistance d'interface avec la température, nous nous sommes intéressés à l'étude des effets des dilatations différentielles entre le nickel et l'époxy. Ainsi, la théorie de la thermoélasticité [4, eq.c, §151], permet de calculer les déplacements u_m des deux milieux cylindriques en contact (considérés comme isothermes) en fonction du niveau de température et des propriétés thermophysiques des matériaux :

$$u_m = (1 - \nu_m) \cdot \alpha_m \cdot \frac{\phi}{2} \cdot T_m, \quad m = \text{Ni ou ep} \quad (2)$$

où α_m est le coefficient de dilatation et ν_m le coefficient de poisson ($\alpha_{\text{Ni}} = 13,3 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $\alpha_{\text{ep}} = 97 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $\nu_{\text{Ni}} = 0,312$, $\nu_{\text{ep}} = 0,35$).

Si on suppose une pression de contact nulle à l'interface à 20°C, la différence entre le déplacement de l'époxy et celui du nickel fournit l'épaisseur du décollement. On en déduit la

dépendance en température de la résistance thermique de la lame d'air, correspondant au décollement, par l'expression :

$$\frac{dR_{air}}{dT} = \frac{\phi \left[(1 + \nu_{ep}) \alpha_{ep} - (1 + \nu_{Ni}) \alpha_{Ni} \right]}{2\lambda_{air}} \quad (3)$$

On obtient ainsi pour des fils de nickel d'un diamètre de 26,9 , 55,8 et 122,9 μm des valeurs de dR_{air}/dT égales respectivement à 0,59 , 1,22 et 2,54.10⁻⁷ m².W⁻¹. Ces valeurs sont ainsi très proches des pentes dR_i/dT obtenues précédemment. Elles sont néanmoins légèrement plus fortes, ceci pourrait être dû à l'adhérence entre le nickel et l'époxy, qui du fait de la rugosité du fil, freine le décollement à l'interface. Ceci n'est pas pris en compte dans le modèle analytique utilisé pour lequel on a considéré des surfaces lisses et une pression de contact nulle à 20°C.

Afin de compléter l'analyse des valeurs de résistance d'interface obtenues, les études en cours portent sur la pression de contact initiale (à 20°C) qui n'est pas nulle en raison du retrait chimique de la résine époxy lors de sa polymérisation, retrait qui est typiquement de l'ordre de 2 à 3% pour les résines époxy. En parallèle, nous effectuons des mesures de rugosité des fils à l'aide d'un profilomètre optique, ces rugosités pouvant en particulier influencer sur les différentes valeurs des résistances d'interface obtenues à 20°C pour les trois diamètres de fil.

8. Conclusion

Des mesures de résistances thermiques d'interface ont été effectuées entre résine époxy et inclusions métalliques à partir d'échantillons fabriqués avec des fils de nickel tendus dans un moule avant la mise en place de la résine. Le chauffage du fil métallique est réalisé par effet Joule et la mesure de sa température est obtenue via le relevé de sa résistance électrique. La résistance d'interface fil métallique/matrice est estimée en utilisant un modèle thermique développée à l'aide de la méthode des quadripôles. Une analyse de sensibilité a été réalisée afin d'optimiser la durée du chauffage (typiquement 10ms).

Des essais ont été réalisés pour différents diamètres de fils de nickel (26,9 , 55,8 et 122,9 μm) et différentes températures initiales 20, 35 et 50°C. Les valeurs de résistance d'interface pour des fils de nickel au sein de résine époxy sont comprises entre de 0,4.10⁻⁵ et 1,6.10⁻⁵ m².K.W⁻¹. Les résistances thermiques d'interface augmentent fortement avec la température initiale jusqu'à un rapport 3 pour un écart de température de seulement 30°C. Par ailleurs, la résistance d'interface varie avec le diamètre du fil, ce qui montre la non validité de l'hypothèse classique utilisée dans les modèles de conductivité effective qui consiste à considérer la même valeur de R_i quelle que soit la taille des inclusions.

Références

- [1] E. Chapelle, B. Garnier, T. Dupuis, F. Danes, B. Bourouga, Thermal contact resistance measurement between conductive particles and matrix in polymer composites, proc. à paraître, 29th ITCC – 17th ITES (Birmingham, Alabama-USA, 24-27 juin 2007).
- [2] D. Maillat, S. Andre, J. C. Batsale, A. Degiovanni, C. Moyne, *Thermal quadrupoles*, Wiley Chichester (2000).
- [3] N.D. Milošević, M. Raynaud, K.D. Maglic, Estimation of contact resistance between the materials of double-layer sample using the laser flash method, *Inv. Prob. in Eng.*, 10-1 (2002), 85-103.
- [4] S. P. Timoshenko and J. N. Goodier, *Theory of Elasticity*, 3rd ed., McGraw-Hill, New York (1970).