

# Resistance thermique de contact entre inclusion métallique et matrice dans les composites à matrice thermoplastique

Eric CHAPELLE<sup>1\*</sup>, Bertrand GARNIER<sup>1</sup>, Bezeid DEDDY<sup>1</sup>, Abderrahim BOUDENNE<sup>2</sup>, Brahim BOUROUGA<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire de Thermocinétique, Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes  
Rue C. Pauc - BP50609 - 44306 Nantes cedex 03

<sup>2</sup>Centre d'Etude et de Recherche en Thermique, Environnement et Systèmes (CERTES)-EA 3481  
Université Paris 12 Val de marne- 61, avenue du Général de Gaulle- 94010 Créteil Cedex

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

**Résumé** – Dans les polymères chargés de particules conductrices, l'effet de la résistance thermique de contact entre inclusion et matrice sur la conductivité effective est d'autant plus important que le taux de charge est élevé. Des mesures de résistances d'interface ont été réalisées entre une matrice thermoplastique et des fils métalliques, c'est-à-dire pour le cas des renforts fibreux. Avec des diamètres de fil de nickel compris entre 26,9 et 122,9 $\mu\text{m}$  et des températures comprises entre 20 et 65°C, la résistance de contact nickel/polypropylène est comprise entre  $1,3 \cdot 10^{-6}$  et  $7,2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$ . Elle augmente avec le diamètre des fils, mais ne varie quasiment pas avec la température. Un point marquant est le fait que le rapport résistance d'interface sur diamètre du fil est quasi constant pour l'ensemble des essais réalisés avec les fils de nickel dans du polypropylène.

## Nomenclature

$E$	conductivité effective relative	<i>Symboles grecs</i>	
$L$	longueur du fil, $m$	$\delta$	résidu, °C
$R_c$	résistance therm. de contact, $\text{m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$	$\phi$	diamètre du fil, $m$
$V$	tension de déséquilibre, $V$	$\lambda$	conductivité thermique, $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
$U$	tension d'alimentation, $V$	$\theta$	température complexe, °C
$P_0$	puissance électrique, $W$	<i>Indices et exposants</i>	
$p$	paramètre de Laplace	$Ni$	fil de nickel
$Z$	impédance complexe, $\text{K} \cdot \text{W}^{-1}$	$pp$	matrice polypropylène

## 1. Introduction

L'ajout de charges métalliques permet de conférer au plastique une conductivité thermique qui pourrait permettre d'utiliser ces matériaux pour des applications en thermique [1]. Cependant, les performances en termes de conductivité thermique effective ne sont pas suffisantes pour justifier une utilisation à grande échelle de ces polymères chargés. Un des verrous est la résistance thermique de contact entre inclusion et matrice dont le rôle devient essentiel lorsque le taux de charge est élevé [2]. Une valeur élevée de résistance thermique d'interface  $R_c$ , peut résulter d'une dilatation thermique différentielle ou d'une faible adhésion entre les phases.

L'objectif de ce travail est de caractériser la résistance thermique de contact entre des fils de nickel correspondant à des inclusions de type fibre et une matrice thermoplastique. 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  $R_c$ . En effet, dans les modèles de prédiction de la conductivité effective, la résistance d'interface inclusion/matrice est souvent considérée

indépendante de la taille des inclusions et de la température, ceci résultant de l'absence de mesures de  $R_c$ . dans la littérature, ces mesures étant rendues difficiles par la faible taille des inclusions (typiquement de quelques dizaines à quelques centaines de microns).

Une étude similaire a été réalisée dans le cas de fils de nickel moulés dans une résine thermodurcissable de type époxy mise en forme à 20°C [3]. On avait constaté une dépendance de  $R_c$  avec le diamètre des fils et la température de l'échantillon entre 20 et 50°C, l'effet de la température sur  $R_c$  résultant du décollement de la résine autour des fils en raison des dilatations différentielles. Le cas étudié ici (résine thermoplastique) est très différent : la résine étant mise en forme à une température bien supérieure (180°C) à la température de mesure de  $R_c$  entre 20 et 65°C, il n'en résultera aucun décollement et des valeurs et comportements de  $R_c$  différents.

## 2. Méthode de mesure de $R_c$ inclusion/matrice

Les échantillons de composites ont été réalisés à partir de fils de nickel de différents diamètres : 26,9 , 55,8 et 122,9  $\mu\text{m}$  tendus dans une matrice résine thermoplastique (figure 1-a), un fil représentant une inclusion de type fibre. Afin de réaliser des mesures de  $R_c$  entre inclusion et matrice, chaque fil métallique de l'échantillon est relié à un pont de Wheatstone, un échelon de tension assurant le chauffage du fil de nickel par effet Joule, cf. figure 1-b. 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.

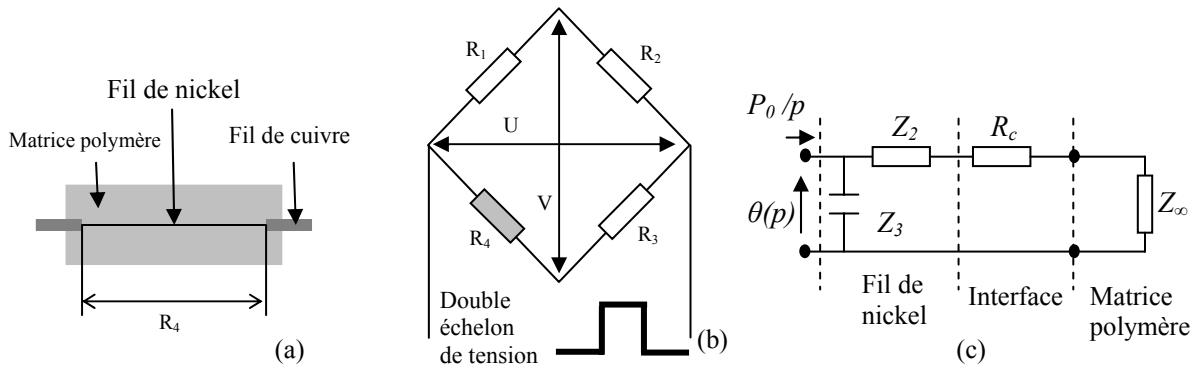


Figure 1 : (a,b) Principe de mesure de  $R_c$  fil de nickel/matrice polymère et (c) modèle thermique

Afin d'obtenir  $R_c$  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 $\mu\text{m}$  ont une longueur de 30mm, le ratio longueur sur diamètre dépassant 100, l'hypothèse de transfert thermique 1D axisymétrique a été retenue. Une condition de type semi-infini a été considérée au loin dans le polymère compte tenu de la très faible durée de chauffage (10ms) qui résulte de l'étude de sensibilité [3]. En utilisant la méthode des quadripôles, la température moyenne du fil de nickel  $\theta$  s'écrit dans l'espace de Laplace sous la forme [4] :

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

Le réseau d'impédance équivalent est présenté sur la figure 1-c. On trouvera les expressions de  $Z_2$ ,  $Z_3$  et  $Z_\infty$  en fonction du paramètre  $p$  de Laplace et des caractéristiques géométriques et physiques du système dans un travail précédent réalisé dans le cas d'une interface époxy/nickel [3]. L'évolution de la température moyenne  $T$  du fil, cf. éq.(2), est obtenue par la méthode d'inversion numérique de Gaver-Stehfest [4] à partir de la température calculée dans l'espace de Laplace  $\theta(p, R_c)$ , éq.(1).

$$T(t, R_c) = \frac{\ln(2)}{t} \sum_{j=1}^{20} V_j \theta\left(\frac{j \ln(2)}{t}, R_c\right) \quad (2)$$

Le modèle thermique obtenu est ainsi utilisé pour l'estimation simultanée des deux paramètres  $R_c$  et  $\lambda_{pp}$  à partir des mesures de la température moyenne  $T$  du fil de nickel, en utilisant la méthode du SIMPLEX.

### 3. Dispositif expérimental – Fabrication des échantillons

Le circuit d'alimentation est piloté à l'aide d'un transistor MOSFET Vishay IRFP460LCPBF (qui joue le rôle d'un interrupteur à très faible temps de réponse) lui-même commandé par un générateur d'impulsion Tektronix PG201. Lors de la fermeture du circuit, les tensions d'alimentation  $U$  et de déséquilibre  $V$  du pont de Wheatstone sont enregistrées à l'aide de deux sondes différentielles Tektronix ADA400 reliées à un oscilloscope numérique Tektronix TDS5052.

Les fils de nickel sont des fils étirés donc avec une même méthode de fabrication que les fibres métalliques utilisées dans les composites chargés. La matrice en thermoplastique est une résine de type polypropylène (PP-HV252) qui fond à 165°C. Les échantillons ont été réalisés en tendant des fils de nickel dans le plan de joint d'un moule en aluminium en deux parties (figure 2). Deux plaques de thermoplastique déjà moulées sont disposées de part et d'autre des fils puis l'ensemble est chauffé à 180°C, c'est-à-dire au-delà de la température de fusion du thermoplastique. Un dispositif constitué de plaques et de ressorts permet d'exercer une pression sur la partie supérieure du moule lors du chauffage à 180°C afin de mettre en forme la résine autour des fils.

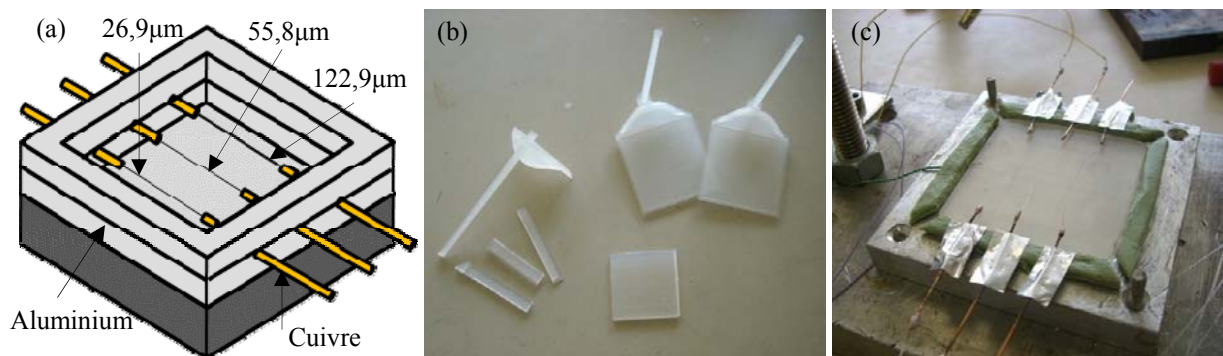


Figure 2 : Fabrication des échantillons : (a) schéma du moule (b) plaques de thermoplastique (c) positionnement des fils de nickel soudés dans le plan de joint

L'évolution de la température et de la puissance dissipée dans un fil au cours d'un essai est présentée dans la figure 3. Dans le tableau 1, les valeurs de  $R_c$  obtenues avec 5 mesures successives sont très voisines, la moyenne est de  $1,25 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$ . Il en est de même pour la conductivité estimée du polypropylène, la valeur moyenne étant ici  $0,27 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ . Les résidus de l'estimation sont faibles, 0,005°C en moyenne pour cet échantillon.

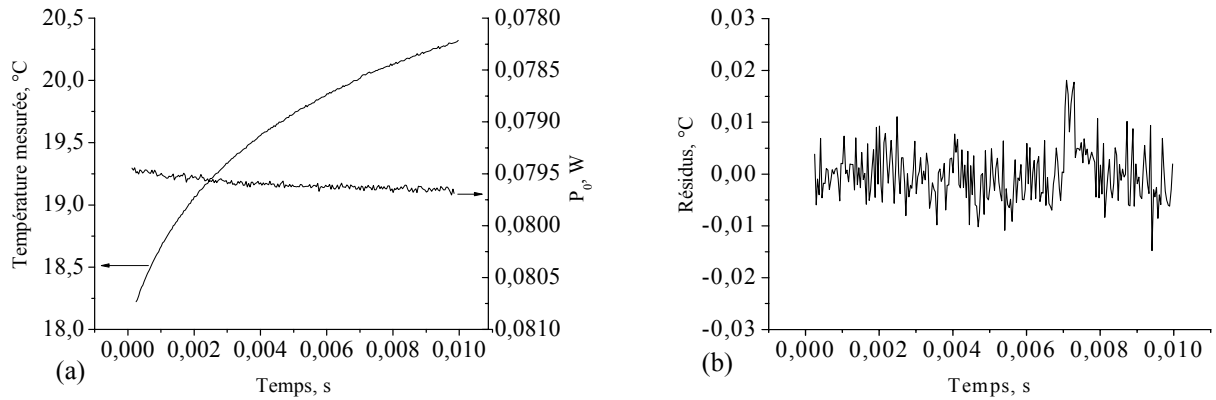


Figure 3 : (a) Température et puissance électrique mesurées et (b) résidus de température ( $T_{initiale}=20^{\circ}\text{C}$  ; fil avec  $\phi=26,9\mu\text{m}$ .)

Test n°	1	2	3	4	5
$\Delta T_{max} / ^{\circ}\text{C}$	2,10	2,11	2,11	2,13	2,10
$\lambda_{pp} / \text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	$0,271\pm 0,003$	$0,270\pm 0,003$	$0,270\pm 0,003$	$0,269\pm 0,003$	$0,270\pm 0,003$
$R_c / 10^{-6}\text{m}^2\cdot\text{K}\cdot\text{W}^{-1}$	$1,27\pm 0,34$	$1,25\pm 0,34$	$1,25\pm 0,34$	$1,26\pm 0,34$	$1,25\pm 0,34$
$\delta_{RMS} / ^{\circ}\text{C}$	0,005	0,004	0,005	0,005	0,006

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

#### 4. Effet de la température initiale et du diamètre des fils

Une série de 45 essais a été réalisée pour quatre températures initiales et pour trois diamètres  $\phi$  de fil de nickel. Les résultats de l'estimation des résistances de contact 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		$1,26\pm 0,33$	$3,07\pm 0,43$	$6,46\pm 1,16$
35		$1,31\pm 0,34$	$3,06\pm 0,49$	$6,64\pm 1,13$
50		$1,46\pm 0,41$	$3,13\pm 0,50$	$6,88\pm 1,17$
65		$1,63\pm 0,42$	$3,42\pm 0,75$	$7,23\pm 1,23$

Tableau 2 : Résistances d'interface estimées  $R_c [10^{-6}\text{m}^2\cdot\text{K}\cdot\text{W}^{-1}]$  vs.  $\phi$  et  $T_{initiale}$

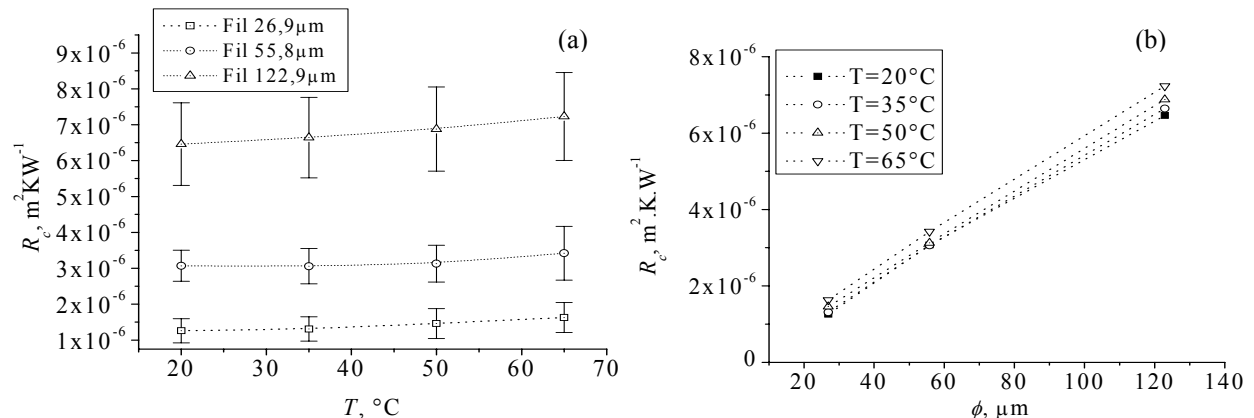


Figure 4 : Effet sur  $R_c$  de (a) la température initiale et (b) du diamètre des fils

Compte tenu des incertitudes de mesure,  $R_c$  varie peu avec la température initiale pour la plage de température étudiée (figure 4a). La dépendance de  $R_c$  avec  $\phi$  est quant à elle assez linéaire (figure 4b) et ne semble pas dépendre de la température. Lorsque le diamètre des fils

augmente de 26,9 à 122,9 $\mu\text{m}$ , les valeurs de  $R_c$  sont multipliées par un facteur égal à environ 4,8. Par ailleurs pour les 45 essais, les valeurs estimées de conductivité de la résine thermoplastique sont très voisines, la valeur moyenne étant égale à 0,27  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ .

## 5. Prise en compte des mesures de $R_c$ dans un modèle de conductivité effective

En calculant le rapport  $R_c/\phi$  à partir des résultats précédents de mesures issues du tableau 2, on constate que le rapport  $R_c/\phi$  varie peu en fonction du diamètre des fils ou de la température (tableau 3). La valeur moyenne est égale à 0,0535 $\pm$ 0,0142  $\text{m}\cdot\text{K}\cdot\text{W}^{-1}$ , l'incertitude étant égale à 1,96 fois l'écart type.

La première question est pourquoi la résistance d'interface  $R_c$  varie avec le diamètre  $\phi$  des fils? Un certain nombre de paramètres liés à la topographie des surfaces en contact interviennent généralement dans les modèles prédictifs de la résistance de contact. Or, en utilisant un profilomètre optique (UBM microfocus), on a constaté des rugosités arithmétiques  $R_a$  suivant la circonférence des fils de 0,27, 0,35 et 0,48 $\mu\text{m}$  pour les fils de diamètres respectivement de 26,9, 55,8 et 122,9 $\mu\text{m}$ , c'est à dire une augmentation de la rugosité avec le diamètre des fils ; la rugosité suivant les génératrices des fils étant identiques pour les 3 fils et égale à 0,14 $\mu\text{m}$ . La rugosité suivant la circonférence qui dépend du diamètre des fils résulte probablement des rugosités des filières permettant de les fabriquer. Une autre voie possible d'effet du diamètre des fils sur la valeur de  $R_c$  peut être une pression de contact différente, mais une quantification de cette grandeur est difficile à réaliser.

$\phi, \mu\text{m} \downarrow$	$T, ^\circ\text{C} \rightarrow$	20	35	50	65
26,9		0,0483	0,0483	0,0558	0,0595
55,8		0,0556	0,0556	0,0556	0,0609
122,9		0,0529	0,0537	0,0561	0,0586

Tableau 3 : Rapports  $R_c/\phi$  [ $\text{m}\cdot\text{K}\cdot\text{W}^{-1}$ ] issus des mesures de  $R_c$  du tableau 2

Le fait que le rapport  $R_c/\phi$  soit quasi constant est un résultat très nouveau par rapport à ce qui existe dans la littérature. Souvent, on considère que la résistance d'interface inclusion-matrice est constante quelle que soit la taille de l'inclusion, il en résulte que lorsque les particules deviennent petites – à taux de charge égal – le rapport surface sur volume augmente et la conductivité effective diminue alors fortement [5]. Dans le cas de fibres fabriquées à l'aide de fils découpés puis sectionnés – procédé de fabrication le plus économique – le comportement de la conductivité effective relative  $E$  semble très différent. La figure 5 présente la dépendance de la conductivité effective du composite avec la taille de l'inclusion et ceci pour deux taux volumiques  $f$  de fibres. Il existe peu de modèles de conductivité effective prenant en compte l'effet de la résistance d'interface. On a considéré le modèle de Hasselman et Johnson [6] valable pour des fibres longues uniformément distribuées et orientées dans la même direction perpendiculairement à la direction principale du flux de chaleur :

$$E = \frac{1+C+D+f(1-C-D)}{1+C+D-f(1-C-D)} \quad \text{avec : } E = \frac{\lambda_{comp}}{\lambda_{pp}} ; C = \frac{2R_c\lambda_{pp}}{\phi} \quad \text{et } D = \frac{\lambda_{pp}}{\lambda_{Ni}} \quad (2)$$

Dans ce modèle, il apparaît le groupement  $R_c/\phi$  (constant dans nos mesures précédentes) ce qui se traduit par une conductivité effective relative indépendante de la taille des inclusions,  $E$  restant inférieure aux valeurs obtenues avec un contact parfait ( $R_c=0$ ).

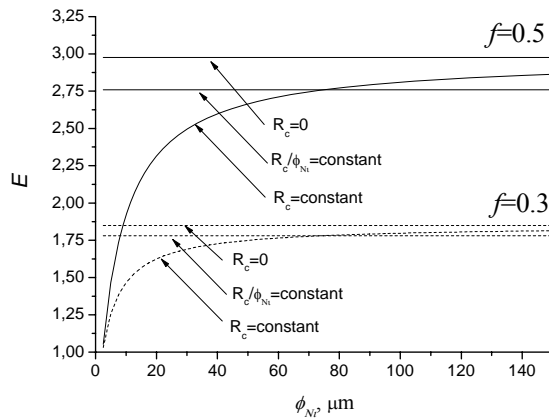


Figure 5: Conductivité effective relative  $E$  en fonction de  $R_c$  et du taux volumique de charge  $f$  ( $R_c/\phi = \text{constant} = 0,0535 \text{ m.K.W}^{-1}$  ;  $R_c = \text{constante} = 4,0 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{K.W}^{-1} = R_c$  pour  $\phi = 75 \mu\text{m}$ )

Par contre, en prenant une même valeur de  $R_c$  quelle que soit la taille des inclusions – comme on le considère classiquement – la valeur de  $E$  décroît fortement lorsque la taille de l’inclusion diminue et présente un écart important par rapport au cas correct (rapport  $R_c/\phi$  constant). Une étude numérique est en cours pour disposer d’un modèle plus exact que celui d’Hasselman [6] limité à des taux de charge faibles.

## 6. Conclusion

Des résistances thermiques d’interface ont été mesurées entre une résine thermoplastique et des 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 polymère est estimée en utilisant un modèle thermique développé à l’aide de la méthode des quadripôles.

Des essais ont été réalisés pour différents diamètres de fils de nickel (26,9 , 55,8 et 122,9  $\mu\text{m}$ ) et différentes températures initiales 20, 35, 50 et 65°C. Les valeurs de résistance de contact pour des fils de nickel au sein de résine thermoplastique de type polypropylène sont comprises entre  $1,3 \cdot 10^{-6}$  et  $7,2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{K.W}^{-1}$ . Les résistances thermiques de contact varient peu avec la température initiale dans la plage de température de 20 à 65°C. Cependant la résistance de contact augmente fortement avec le diamètre du fil et le rapport  $R_c/\phi$  est quasi constant, ce qui montre – dans notre cas de composite – la non validité de l’hypothèse classique utilisée dans les modèles de conductivité effective qui consiste à considérer la même valeur de  $R_c$  quelle que soit la taille des inclusions. A l’aide du modèle d’Hasselman et Johnson [6], on constate que la conductivité effective du composite étudié ne dépend pas du diamètre des fibres.

## Références

- [1] I. Krupa, V. Cecen, R. Tlili, A. Boudenne , L. Ibos, *European Polym. J.*, 44-11 (2008) 3817-3826.
- [2] C. Filip, B. Garnier, F. Danes, *J. Heat Transfer*, 129-12 (2007), 1627-1637.
- [3] E. Chapelle, B. Garnier, B. Bourouga, *Congrès Français de Thermique* (Toulouse, 16-19 mai 2008, ed. SFT Paris), 41-46.
- [4] D. Maillet, S. Andre, J. C. Batsale, A. Degiovanni, C. Moyne, *Thermal quadrupoles*, Wiley Chichester (2000).
- [5] A. Every, Y. Tzou, D. Hasselman, R. Raj, *Acta Metallurgica et Materiala (U.K.)*, 40 (1992), 123-129.
- [6] D.P.H. Hasselman, L.F. Johnson , *J. Comp. Mater.* , 21 (1987), 508.