

Conductivité thermique effective de composites polymère/fibres conductrices

Manel HADDADI¹, Boudjemaa AGOUDJIL¹, Vincent FEUILLET², Laurent IBOS^{2*}, Mustapha KARKRI²

¹ Université El-Hadj-Lakhdar Batna, Laboratoire de Physique, Energétique Appliquée (LPEA), 1 rue Chahid Boukhrouf Mohamed El-Hadi, 05000 Batna, Algérie

² Université Paris-Est, CERTES, 61 Av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex, France

* (auteur correspondant : ibos@u-pec.fr)

Résumé - Une modélisation aux éléments finis est entreprise en vue de modéliser des composites polymères chargés de fibres conductrices. On montre que certains modèles de prédiction sont plus adaptés au cas de fibres perpendiculaires au flux thermique tandis que d'autres sont plus adaptés au cas de fibres parallèles. Les taux de charge doivent rester faibles pour obtenir des résultats de simulation proches des données de mesure. Les composites à fibres perpendiculaires sont plus impactés par la présence d'une résistance de contact que les composites à fibres parallèles.

Nomenclature

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

Paramètres adimensionnels

B distance réduite inclusion/matrice

C résistance de contact réduite

D rapport conductivité matrice/fibre

E rapport conductivité composite/matrice

Q flux de chaleur

Symboles grecs

α rapport d'aspect des fibres

φ concentration volumique des charges

τ température, K

Indices et exposants

eff effectif

f fibre

m matrice

1. Introduction

Les matériaux polymères sont souvent utilisés comme isolants en raison de leur faible conductivité thermique. L'ajout de fibres conductrices de chaleur peut augmenter significativement la conductivité thermique effective des polymères [1]. L'utilisation de polymères chargés permet de réaliser une géométrie complexe tout en assurant un coût de production inférieur et un allègement par rapport aux matériaux métalliques. Cependant, la quantité de charges nécessaire pour assurer une augmentation significative de la conductivité est élevée. A titre d'exemple, Tekce et al. [2] ont obtenu une conductivité thermique d'un polyamide augmentée de 4% pour une fraction volumique de 30% de fibres de cuivre. Une autre voie permettant d'augmenter le transfert de chaleur dans les polymères est d'utiliser des charges minérales. Les matériaux composites à base de fibres minérales dispersées dans une matrice polymère sont utiles dans de nombreuses applications du fait que ce type de fibres permet également d'obtenir un renforcement mécanique important. Les propriétés du matériau composite final dépendent de nombreux facteurs parmi lesquels : la concentration des inclusions, le rapport entre les propriétés des deux composants, la taille et la forme des inclusions et les interactions entre la matrice et les inclusions [3-5].

La wollastonite est une forme naturelle du Silicate de Calcium. Il s'agit d'un matériau relativement dur de densité égale à 2,9. En raison de sa nature aciculaire (rapport d'aspect compris entre 10 et 20), la wollastonite est un renfort prometteur pour les thermoplastiques. Pour cette raison, un grand nombre d'études sur les composites thermoplastiques-wollastonite ont vu le jour ces derniers temps. La majorité de ces études ont porté sur l'influence de la

wollastonite sur les propriétés mécaniques et thermiques des composites [6-8]. Récemment, Luyt *et al.* [9] ont étudié la morphologie, les propriétés mécaniques et thermiques du polypropylène renforcé par de la wollastonite. Krupa *et al.* [10] ont étudié les propriétés thermophysiques de l'éthylène vinyl acétate (EVA) renforcé par des fibres de wollastonite métallisées. Ils ont observé une augmentation significative de la conductivité thermique du composite en fonction de l'augmentation de la concentration des fibres.

L'objectif de ce travail est d'étudier par simulation numérique la conductivité thermique d'un composite à matrice polymère chargée par des fibres conductrices. En utilisant des paramètres adimensionnels, une simulation par éléments finis des champs de température dans une cellule élémentaire 3D permet de calculer la conductivité thermique du composite [11]. Une étude de l'évolution de la conductivité effective a été entreprise en faisant varier plusieurs paramètres : la résistance de contact et la distance entre les fibres et la matrice, le rapport d'aspect des fibres ainsi que le rapport de conductivité thermique entre les deux phases. On considère à ce stade de l'étude uniquement des empilements réguliers de fibres dans la matrice. Une comparaison des résultats de simulation à des modèles analytiques et à des données expérimentales est également effectuée.

2. Modélisation de la conductivité thermique effective de matériaux composites

2.1. Modélisation numérique

L'analyse par éléments finis nécessite la discrétisation de la structure en un nombre fini de sous-domaines. Afin de modéliser le transfert au sein du composite, nous considérons une cellule élémentaire correspondant à une fibre centrée dans un rectangle (figure 1).

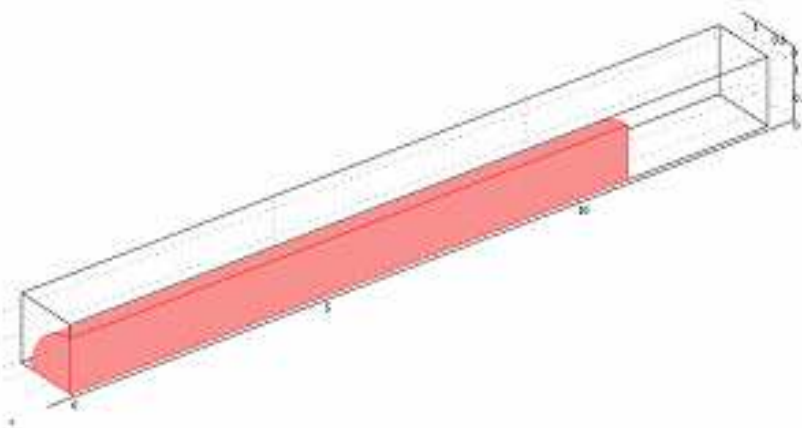


Figure 1 : Cellule élémentaire utilisée pour la simulation numérique

Le champ de température dans le matériau composite est défini en résolvant numériquement l'équation de Laplace à l'aide d'une formulation aux éléments finis avec les conditions aux limites suivantes. Les deux faces perpendiculaires à la direction de l'écoulement de la chaleur sont isothermes à des températures respectivement égales à τ_1 et τ_2 . Les faces parallèles à la direction de l'écoulement de la chaleur sont adiabatiques. Pour simplifier le problème et diminuer le temps de calcul, nous étudions seulement le 1/8^{ème} de la cellule élémentaire. On considère par ailleurs que les fibres sont de forme cylindrique. Les grandeurs adimensionnelles sont définies comme suit :

$X = \frac{x}{r}, Y = \frac{y}{r}$ et $Z = \frac{z}{r}$: variables d'espace sans dimension, avec r le rayon de la fibre ;

$B = \frac{b-r}{r}$ et $D = \frac{k_m}{k_f}$: distance entre inclusion et matrice et rapport entre les conductivités de la matrice et des fibres ;

$\alpha = \frac{L}{d}$: rapport entre la longueur L et le diamètre d de la fibre ;

$C = \frac{r_c k_m}{r}$: résistance de contact réduite à l'interface fibre-matrice ;

$E = \frac{k_{eff}}{k_m}$: rapport entre les conductivités du composite et de la matrice.

Le flux de chaleur traversant la cellule élémentaire est défini par la relation suivante :

$$Q = \frac{k_{eff} \Delta T \alpha b^2}{b} = -k_m \iint_{S_1} \frac{d\tau}{dz} dx dy \quad (1)$$

Pour déterminer la conductivité thermique effective du matériau modélisé, nous avons utilisé les équations (2) et (3) obtenus à partir de la relation (1) :

$$E_t = \frac{k}{k_m} = \frac{Q}{\alpha(B+1)} \quad (2)$$

$$E_l = \frac{k}{k_m} = \frac{\alpha Q}{(B+1)} \quad (3)$$

L'équation (2) est utilisée pour le cas des fibres perpendiculaires, tandis que l'équation (3) est utilisée pour les fibres parallèles.

2.2. Modèles de prédiction théorique

De nombreux modèles ont été proposés dans la littérature pour la prédiction de la conductivité thermique des matériaux composites [12-15]. Toutefois, seuls quelques modèles prennent en compte la résistance de contact entre la matrice et les fibres et la taille des fibres. Nous utiliserons dans ce travail trois modèles applicables dans le cas de l'utilisation des fibres. Hashin & Shtrikman [12] développent un modèle de prédiction de la conductivité thermique effective pour les matériaux composites macroscopiquement homogènes, isotropes et constitués de deux phases. Selon Hashin & Shtrikman, la conductivité s'exprime par la relation suivante :

$$E = \frac{k}{k_m} = \frac{1 + (d-1)\varphi \beta}{1 - \varphi \beta} \quad (4)$$

avec

$$\beta = \frac{k_f - k_m}{k_f + (d-1)k_m} = \frac{1/D - 1}{1/D + (d-1)} \quad (5)$$

où k_{eff} , k_m et k_f sont respectivement les conductivités thermiques du composite, de la matrice et des fibres, d est un paramètre dont la valeur dépend de la géométrie des charges et φ représente la concentration volumique des charges. Une modification a été proposée sur ce

modèle par Hasselman & Johnson [16] ainsi que Y. Benveniste [17] afin de prendre en compte l'effet de la résistance de contact :

$$E = \frac{k_{eff}}{k_m} = \frac{1 + (d-1)\varphi\bar{\beta}}{1 - \varphi\bar{\beta}} \quad (6)$$

avec

$$\bar{\beta} = \frac{\frac{k_f}{k_m} - \left(1 + \frac{k_f r_c}{r}\right)}{\frac{k_f}{k_m} + (d-1)\left(1 + \frac{k_f r_c}{r}\right)} = \frac{\frac{1}{D} - \left(1 + \frac{C}{D}\right)}{\frac{1}{D} + (d-1)\left(1 + \frac{C}{D}\right)} \quad (7)$$

Lewis & Nielsen [12, 15] ont modifié et ont adapté l'équation de Halpin-Tsai pour les modules élastiques des matériaux composites à la conductivité thermique des composites remplis par des inclusions. L'équation de Lewis & Nielsen est donnée par :

$$E = \frac{k_{eff}}{k_m} = \frac{1 + A_{LN} B_{LN} \varphi}{1 - B_{LN} \varphi \psi} \quad (8)$$

avec

$$B_{LN} = \frac{k_f/k_m - 1}{k_f/k_m + A_{LN}} = \frac{1/D - 1}{1/D + A_{LN}} \quad (9)$$

et

$$\psi = 1 + \left(\frac{1 - \varphi_{max}}{\varphi_{max}^2}\right) \varphi \quad (10)$$

où φ_{max} est la fraction maximale de compactage des inclusions et A_{LN} est une constante qui dépend de la forme et de l'orientation des inclusions dans le composite. En 1985, Hatta & Taya [14] développent une méthode de prédiction de la conductivité thermique effective pour des fibres courtes de différentes orientations. Cette approche prend en compte la forme et les interactions entre les fibres de différentes orientations. L'équation de Hatta & Taya est donnée par :

$$k = k_m \left(1 - \frac{\varphi (k_f - k_m) [(k_f - k_m)(2S_{33} + S_{11}) + 3k_m]}{3(k_f - k_m)^2 (1 - \varphi) S_{11} S_{33} + k_m (k_f - k_m) R + 3k_m^2} \right) \quad (11)$$

où les facteurs R et S_{ii} sont liés à la géométrie des inclusions.

3. Composites utilisés pour la comparaison aux résultats de modélisation

Le polymère utilisé dans cette étude est un copolymère élastomère connu sous le nom d'Ethylène-Acétate de Vinyle contenant 18% d'acétate de vinyle [10]. Les renforts utilisés dans cette étude sont des fibres de wollastonite recouvertes par de l'argent. Les principales propriétés de ce polymère et de ces renforts sont données dans le tableau 1 [10].

	$k (W.m^{-1}.K^{-1})$	$\rho (kg.m^{-3})$	$C_p (J.kg^{-1}.K^{-1})$	$L (\mu m)$	α
EVA	0.131	972	1413	-	-
WAg	131	5700	720	44	11

Tableau 1 : Propriétés des matériaux utilisés

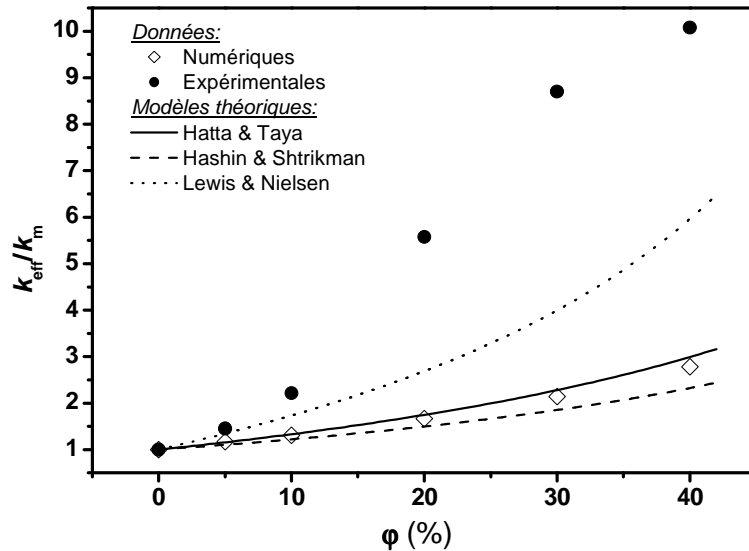


Figure 2 : Comparaison de la conductivité thermique du composite à fibres perpendiculaires à la direction du flux de chaleur aux modèles théoriques et aux résultats expérimentaux

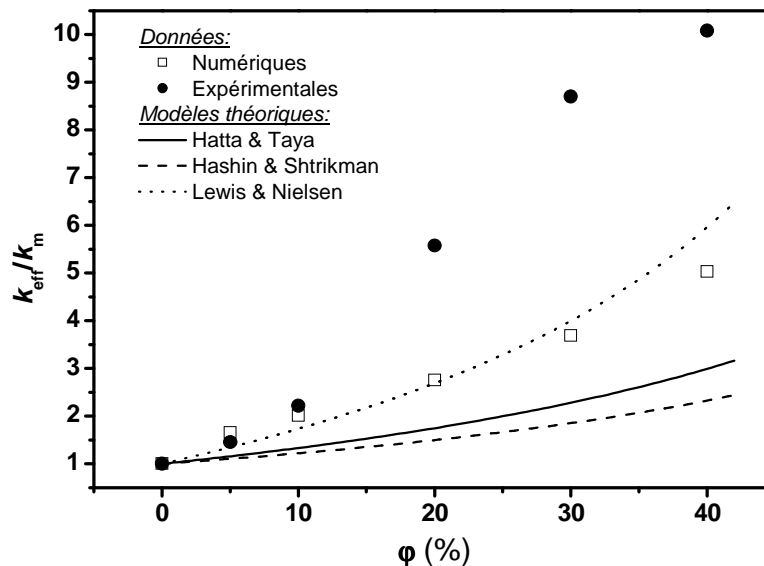


Figure 3 : Comparaison de la conductivité thermique du composite à fibres parallèles à la direction du flux de chaleur aux modèles théoriques et aux résultats expérimentaux

4. Résultats

4.1. Influence de la concentration volumique et de l'orientation des fibres

Afin de simplifier les calculs, les hypothèses suivantes ont été adoptées : les transferts de type radiatifs et convectifs sont négligeables ; le contact thermique entre inclusion et matrice est négligeable ; les inclusions sont de même taille et sont uniformément réparties. La variation de la conductivité thermique du composite EVA/WAg en fonction de la concentration volumique en charges est présentée dans les figures 2 et 3. On peut remarquer une augmentation de la conductivité thermique quand la concentration en charges augmente. Cette augmentation est due au rapport élevé (1000) entre les conductivités thermiques des charges et de la matrice. On observe aussi que la conductivité thermique des composites

chargés de fibres parallèles au flux thermique est plus élevée que dans le cas de fibres orientées perpendiculairement à la direction du flux, résultat par ailleurs attendu.

4.2. Comparaison entre les résultats numériques, théoriques et expérimentaux

Les figures 2 et 3 présentent également une comparaison de l'évolution de la conductivité thermique numérique, expérimentale et théorique des composites EVA/WAg dans le cas de fibres orientées parallèlement et perpendiculairement à la direction du flux de chaleur. D'après la figure 2, on peut remarquer que les modèles de prédiction de la conductivité thermique de Hatta & Taya et Hashin & Shtrikman sont en accord avec les résultats numériques concernant les composites avec fibres perpendiculaires. A l'inverse, c'est le modèle de Lewis et Nielsen qui s'approche le plus des simulations numériques dans le cas de fibres parallèles (figure 3). De manière générale, les modèles et simulations numériques sont proches des résultats expérimentaux dans le cas des faibles concentrations de charges ($\phi < 10\%$).

4.3. Etude de l'influence de la résistance de contact sur la conductivité thermique

Afin d'étudier l'effet de la résistance de contact sur la conductivité thermique, on a supposé différentes valeurs de C ($C \in [1 \times 10^{-5}; 1 \times 10^{-1}]$). Les figures 4 et 5 montrent la variation de la conductivité thermique effective des composites pour différentes valeurs de la résistance de contact et de la concentration en charges. Ces figures indiquent une dépendance de la conductivité thermique avec la résistance de contact. On peut remarquer logiquement que plus le contact entre la matrice et les inclusions est imparfait, plus la conductivité thermique diminue. On observe également que l'effet de la résistance de contact commence à apparaître au-delà de 30% de charges et ceci pour le cas du composite à fibres perpendiculaires. Pour le composite à fibres parallèles, l'effet de la résistance de contact commence à partir de 50% de charges. Le tableau 2 présente les différentes valeurs de la conductivité thermique obtenues pour C et D variables. Il apparaît d'après ces résultats que l'augmentation de la résistance de contact C ou du rapport de conductivité D entraîne, comme attendu, une diminution de la conductivité thermique effective.

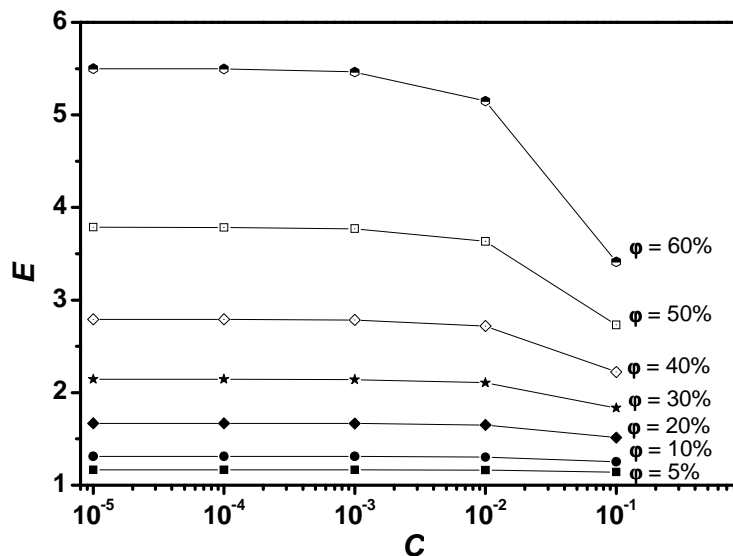


Figure 4 : Influence de la résistance de contact sur la conductivité thermique (cas des fibres perpendiculaires à la direction du flux de chaleur)

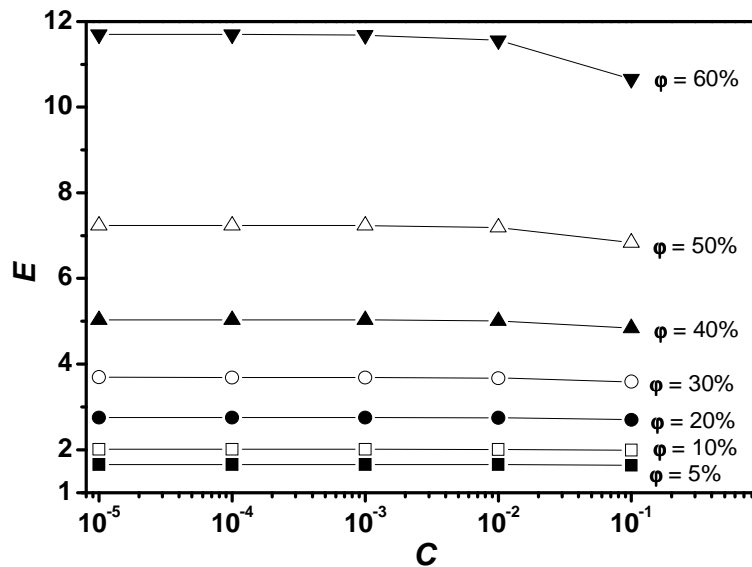


Figure 5 : Influence de la résistance de contact sur la conductivité thermique (cas des fibres parallèles à la direction du flux de chaleur)

$\downarrow C$ $D \rightarrow$	0.0001	0.001	0.01	0.1
0.00001	2.14807	2.14447	2.10904	1.83082
0.0001	2.1477	2.14406	2.10869	1.8306
0.001	2.14404	2.14042	2.10523	1.82838
0.01	2.10902	2.10557	2.07208	1.80681
0.1	1.83574	1.83348	1.81131	1.62803

Tableau 2 : Valeurs de E pour C et D variables ($\phi = 30\%$)

5. Conclusion

Dans cet article, nous avons développé une modélisation numérique 3D qui a permis la détermination de la conductivité thermique du composite pour un arrangement cubique simple. Les différents facteurs d'influence sur la conductivité thermique calculée pris en compte sont la concentration des fibres, la résistance de contact et le rapport de conductivité matrice-fibres. Les résultats obtenus montrent bien une augmentation de la conductivité thermique lorsque la concentration volumique en fibres augmente et une diminution lorsque la résistance de contact augmente. Les modèles de prédiction de la conductivité thermique de Hatta & Taya et Hashin & Shtrikman apparaissent comme les plus proches des résultats numériques obtenus dans le cas de fibres perpendiculaires. Dans le cas de fibres parallèles, il s'agit du modèle de Lewis & Nielsen. Les simulations numériques réalisées ne permettent de modéliser correctement les résultats expérimentaux que dans le cas de composites faiblement chargés ($\phi < 10\%$). Enfin, l'influence d'une résistance de contact à l'interface fibre-matrice n'apparaît de manière significative que pour des taux de charges élevés ($\phi > 30\%$), et ceci principalement pour les composites à fibres perpendiculaires.

Références

- [1] F. Danes, B. Garnier, and T. Dupuis, *Int. J. Thermophysics*, 2003; vol. 24, pp. 771-784

- [2] H. S. Tekce, D. Kumlutas, and I. H. Tavman, *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 2007; vol. 26, pp. 113-121
- [3] Z. Wen, T. Itoh, M. U. Kubo, and O. Yamamoto, "Thermal, electrical, and mechanical properties of composite polymer electrolytes based on cross linked poly(ethylene oxide-co-propylene oxide) and ceramic filler", *Solid State Ionics*, 2003; vol. 160, pp. 141–158
- [4] P. M. Ye, V. Davydenko, P. Pissis, and E. Lebedev, "Electrical and thermal conductivity of polymers filled with metal powders", *Eur. Polym. J.*, 2002; vol. 38, pp. 1887–1897
- [5] W. Thongruang, R. Spontak, and M. Balik, "Correlated electrical conductivity and mechanical property analysis of high-density polyethylene filled with graphite and carbon fiber", *Polymer*, 2002; vol. 43, pp. 2279–2286
- [6] A. Dasari, S. Sarang, and R. D. K. Misra, "Strain rate sensitivity of homopolymer polypropylenes and micrometric wollastonite-filled polypropylene composites", *Mater. Sci. Eng. A Struct. Mater.*, 2004; vol. 368, pp. 191-204
- [7] R. D. K. Misra, R. Hadal, and S. J. Duncan, "Surface damage behavior during scratch deformation of mineral reinforced polymer composites", *Acta Mater.* 2004; vol. 52, pp. 4363-4376
- [8] I. Smit, V. Musil, and I. Svab, "Effects of EPDM and wollastonite on structure of isotactic polypropylene blends and composites", *J. Appl. Polym. Sci.* 2004; vol. 91, pp. 4072–4081
- [9] A. S. Luyt, M. D. Dramicanin, Z. Antic, and V. Djokovic, "Morphology, mechanical and thermal properties of composites of polypropylene and nanostructured wollastonite filler", *Polymer Testing* 2009; vol. 28, pp. 348–356
- [10] I. Krupa, V. Cecen, R. Tlili, A. Boudenne, and L. Ibos, "Thermophysical properties of ethylene–vinylacetate copolymer (EVA) filled with wollastonite fibers coated by silver", *European Polymer Journal* 2008; vol. 44, pp. 3817–3826
- [11] M. Karkri, A. Boudenne, L. Ibos, B. Garnier, and Y. Candau, "Numerical study of thermophysical properties of spheres composite materials", *High Temperatures-High Pressures* 2011; vol. 40, pp. 61-84
- [12] D. Bigg, "Thermal Conductivity of heterophase Polymer Compositions", *Advances in Polymer Science* 1995; vol. 119, pp. 1-30
- [13] K. Wattanakul, H. Manuspiya, and N. Yanumet, "Thermal conductivity and mechanical properties of BN-filled epoxy composite: effects of filler content, mixing conditions, and BN agglomerate size", *Journal of Composite Materials* 2011; pp. 1-14
- [14] H. Hatta and M. Taya, "Effective thermal conductivity of a misoriented short fiber composite", *J. Appl. Phys* 1985; vol. 58, pp. 2478-2486
- [15] R. Pal, "On the Lewis-Nielson model for thermal/electrical conductivity of composites", *Composites Part A: applied science and manufacturing* 2008; vol. 39, pp. 718-726
- [16] D.P.H. Hasselmann, L.F. Johnson, "Effective thermal conductivity of composites with interfacial barrier resistance", *J. Comp. Mater.*, 1987; vol. 21(6), pp. 508-515
- [17] Y. Benveniste, "Effective thermal conductivity of composites with a thermal contact resistance between constituents: nondilute case", *J. Appl. Phys.*, 1987; vol. 61(8), pp. 2840-2843