



HAL
open science

Réalisation expérimentale et modélisation de la formation de chaînes de particules sous l'action d'un champ électrique

Guillaume Belijar, Sombel Diahm, Zarel Valdez Nava, Lionel Laudebat, Thierry Lebey, Thomas B Jones

► **To cite this version:**

Guillaume Belijar, Sombel Diahm, Zarel Valdez Nava, Lionel Laudebat, Thierry Lebey, et al.. Réalisation expérimentale et modélisation de la formation de chaînes de particules sous l'action d'un champ électrique. Symposium de Genie Electrique, Jun 2016, Grenoble, France. hal-01361670

HAL Id: hal-01361670

<https://hal.science/hal-01361670>

Submitted on 7 Sep 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Réalisation expérimentale et modélisation de la formation de chaînes de particules sous l'action d'un champ électrique

G. Belijar,^{1,2} S. Diaham,^{1,2} L. Laudebat,^{1,2} Z. Valdez-Nava,^{1,2} T. Lebey^{1,2} and T. B. Jones³

¹Université de Toulouse; UPS, INPT; LAPLACE (Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie);
118 route de Narbonne, F-31062 Toulouse cedex 9, France.

²CNRS; LAPLACE; F-31062 Toulouse, France.

³Department of Electrical & Computer Engineering, Rochester University
Rochester, USA

RESUME - Dans le cadre de cet article, l'évolution des propriétés diélectriques d'une résine époxy chargée en microparticules de titanate de baryum ($BaTiO_3$) est étudiée lors de sa structuration sous forme de chaînes, sous l'action d'un champ électrique AC. Un modèle de cette formation de chaînes, couplé à une résolution par une méthode des éléments finis (MEF) de l'équation de Laplace, permet d'estimer la permittivité en fonction de la structure des composites. Les résultats obtenus par simulations sont ensuite comparés à des mesures expérimentales pour vérifier la précision ainsi que la robustesse du modèle.

Mots-clés— *époxy/BaTiO₃; chaînage; diélectrophorèse; simulation*

1. INTRODUCTION

Les évolutions actuelles des systèmes électroniques vont de pair avec une augmentation des densités de puissance. Cet accroissement mène à une demande forte de matériaux aux propriétés améliorées, notamment pour des gestions couplées de contraintes électriques-thermiques, thermiques-mécaniques ou thermiques-magnétiques. Des avancées ont été permises grâce à l'utilisation de matériaux composites, avec un compromis entre les propriétés de la matrice et des charges [1]. Cependant, dans de nombreux cas, la demande d'amélioration d'une propriété ne l'est que dans une direction particulière (ex. pour du transfert thermique, un matériau d'interface n'a besoin de conduire la chaleur que de la source chaude vers le dissipateur). Afin de mieux adapter les matériaux composites à ces systèmes, la possibilité de contrôler la structure dans le but de créer des composites anisotropes fonctionnalisés a d'ores et déjà démontré son potentiel. Une des méthodes permettant d'obtenir cette anisotropie consiste à appliquer un champ électrique alternatif (AC) lorsque le milieu est à l'état liquide [2]–[5]. Les particules forment alors des chaînes dans la direction du champ électrique. Ce phénomène est dû aux interactions diélectrophorétiques (dipôle-dipôle) se produisant entre les particules. En parallèle de ces expériences, de nombreux auteurs ont développé des modèles numériques de ce phénomène et ce par diverses approches telles que les méthodes du tenseur de contraintes de Maxwell [6], de Monte-Carlo appliquées à la résolution de

minimum d'énergie [7], dipolaires [8], [9] ou multipolaires [10] et des méthodes par éléments finis (MEF) [11]. Parmi ces études, une seule a porté sur l'extraction d'un paramètre physique en lien avec la modification de la structure (i.e. la transparence du composite [12]). Cependant, la modélisation prédictive de l'évolution des propriétés du composite au cours de sa formation est un aspect crucial pour l'élaboration et l'optimisation des procédés de fabrication de ces matériaux ainsi que pour la compréhension des phénomènes mis en jeu. Dans le cadre de cette étude, une nouvelle méthode de prédiction de l'évolution de la permittivité d'un composite anisotrope est proposée qui consiste en un couplage entre un modèle de chaînage des particules et une résolution de l'équation de Laplace par MEF.

Afin de simuler un nombre important de particules (i.e. quelques centaines), un modèle simplifié d'interaction dipôles-dipôles a été utilisé. Les structures ainsi obtenues sont comparées à des résultats expérimentaux et numériques afin de valider le modèle. Les résultats de l'évolution de la permittivité sont ensuite confrontés à des mesures expérimentales en faisant varier des paramètres tels que la viscosité et la permittivité de la résine mais aussi le taux de chargement.

2. METHODES NUMERIQUE ET EXPERIMENTALE

2.1. Description du modèle de formation des chaînes

Les méthodes du tenseur de contrainte de Maxwell et du calcul par multipôles de la force de diélectrophorèse (DEP) donnent accès à des évaluations précises. Cependant les temps de calculs et les complexités des modèles engendrés ne permettent pas leur utilisation pour de nombreuses particules. La méthode retenue, bien que moins précise, permet de simuler un nombre élevé de particules (i.e. jusqu'à plusieurs milliers). Dans cette méthode chaque particule est représentée par son moment dipolaire, que l'on considère induit uniquement par le champ électrique extérieur. Dans ce cas, l'influence des particules voisines sur la déformation du champ électrique n'est pas prise en compte. Le principal défaut de cette technique est une imprécision croissante lorsque les distances inter-particules sont faibles. Cette méthode est néanmoins corroborée par le fait que

lors du parcours d'une particule pour rejoindre sa voisine celle-ci est à une distance suffisante pour que l'approximation dipolaire soit suffisamment précise. Dans cette étude, les conductivités des particules et du milieu ont été négligées, cette hypothèse étant justifiée par le comportement isolant des matériaux utilisés. Le moment dipolaire d'une particule est alors donné par [13] :

$$p = 4\pi\epsilon_0\epsilon_m r^3 K E_0 \quad (1)$$

avec ϵ_0 la permittivité du vide, ϵ_m la permittivité du milieu, r le rayon de la particule, K le facteur de Clausius-Mossotti et E_0 le champ électrique extérieur. Le facteur de Clausius-Mossotti avec l'hypothèse faite sur les conductivités est alors donné par :

$$K = \frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_p + 2\epsilon_m} \quad (2)$$

Connaissant l'éq. 1 et en considérant que le champ électrique a une direction unique portée par z , la force de DEP exercée par la particule j sur la particule i est donnée par l'équation suivante :

$$\mathbf{F}_{DEP,ij} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_m} \frac{3p^2}{d_{ij}^5} (\mathbf{d}_{ij} + 2d_{ij-z}\mathbf{e}_z - \frac{5}{d_{ij}^2} d_{ij-z}\mathbf{d}_{ij}) \quad (3)$$

telle que proposée par Kadaksham [8]. \mathbf{d}_{ij} est le vecteur formé par les centres des particules, d_{ij} sa norme, \mathbf{e}_z le vecteur unitaire porté par z . La direction et le sens des interactions diélectrophorétiques entre deux particules sont représentés sur la Fig. 1.

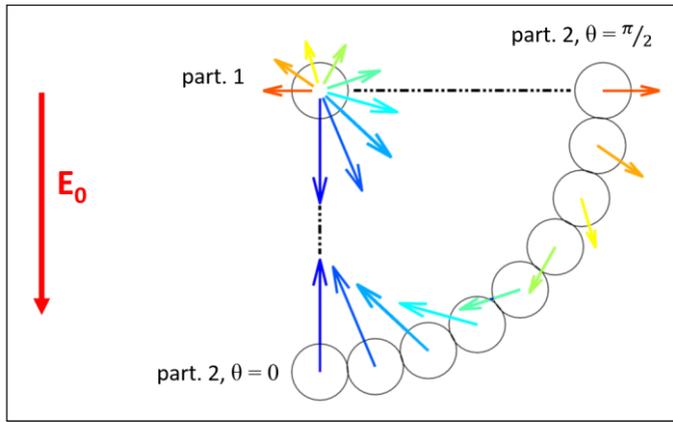


Fig. 1. Visualisation de la force de DEP entre 2 particules en fonction de l'angle formé par le champ électrique et l'axe des centres des particules. La taille des vecteurs affichés est proportionnelle à l'amplitude de la force de DEP.

La force totale agissant sur la particule i est :

$$\mathbf{F}_{D,i} = \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \mathbf{F}_{D,i,j} \quad (4)$$

Une fois la force de DEP calculée, les trajectoires des particules sont déterminées grâce à l'équation du mouvement suivante :

$$m\mathbf{a}_i = \mathbf{F}_{D,i} - 6\pi\eta r\mathbf{V}_i - m\mathbf{g}\mathbf{e}_z + \mathbf{F}_{coll-particules} + \mathbf{F}_{coll-parois} \quad (5)$$

avec m la masse de la particule, \mathbf{a}_i son accélération, η la viscosité du milieu, \mathbf{V}_i la vitesse de la particule. Le deuxième terme à droite de l'éq. 5 correspond à la force de trainée. g est

l'accélération gravitationnelle, $\mathbf{F}_{coll-particules}$ et $\mathbf{F}_{coll-parois}$ les forces qui gèrent respectivement les collisions entre particules et avec les parois. Ces dernières correspondent à des forces équivalentes à des ressorts ayant des valeurs non-nulles uniquement lors des collisions. La répartition des différentes forces est représentée sur la Fig. 2.

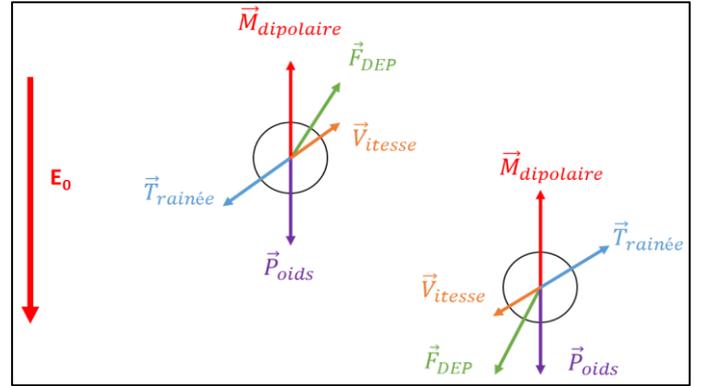


Fig. 2. Schéma représentant les forces simulées à l'exception des forces de gestion des collisions. Les moments dipolaires ainsi que les vitesses des particules sont eux aussi représentés.

2.2. Calcul de la permittivité

La permittivité globale du composite est calculée en se basant sur la géométrie extraite du modèle de chaînage. L'équation de Laplace est résolue par MEF [14]. L'énergie totale du système est évaluée en intégrant sur le volume le produit du champ électrique et du déplacement électrique :

$$W = \iiint_{volume} \mathbf{E} \cdot \mathbf{D} \cdot d^3r \quad (6)$$

avec E le champ électrique et D le déplacement électrique. La capacité du système est donnée par :

$$C = \frac{2W}{V^2} \quad (7)$$

avec V le potentiel électrique appliqué. L'éq. (7) est valide en supposant que les matériaux ont un comportement linéaire en champ électrique. La permittivité globale est finalement calculée par :

$$\epsilon = \frac{C \cdot l}{\epsilon_0 S} \quad (8)$$

avec l la distance inter-électrodes et S la surface des électrodes.

2.3. Mesure de la permittivité en temps réel

Afin de mesurer la permittivité au cours de la formation des chaînes, un mélange d'époxy/BaTiO₃ est coulé entre deux plaques d'acier inoxydable jouant le rôle d'électrodes (cf. Fig. 3 (2)) [4]. La distance inter-électrodes est fixée à 100 μm par des espaceurs en polyimide placés aux coins des électrodes. La cellule ainsi créée est placée dans un banc de spectroscopie d'impédance (cf. Fig. 3 (1)) permettant l'application du champ électrique nécessaire à la formation des chaînes simultanément à la mesure des propriétés diélectriques du composite. La température de l'enceinte est régulée à 30 °C. Les valeurs de permittivité sont extraites en assimilant le matériau à un circuit RC parallèle et la cellule à une configuration plan-plan. La fréquence de la tension appliquée est de 1 kHz.

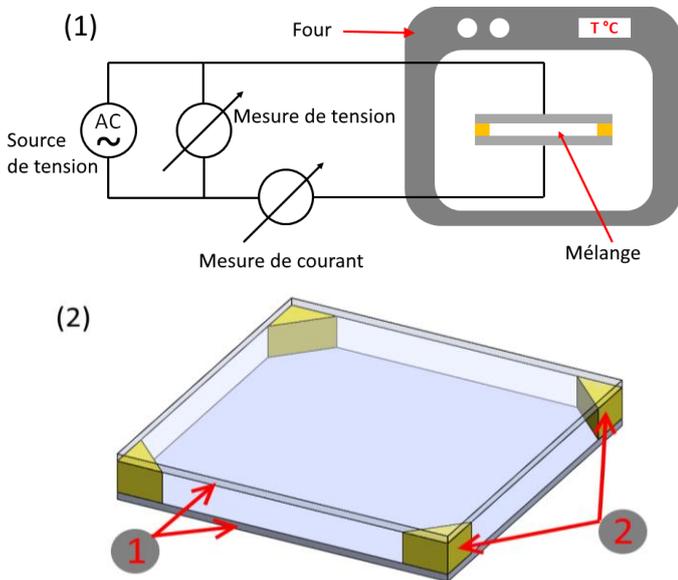


Fig. 3. (1) Banc expérimental pour la mesure en temps réel des propriétés diélectriques des composites. (2) Cellule pour la mesure diélectrique, 1/ électrodes en acier inoxydable 33×33 mm, 2/ espaceurs en polyimide épaisseur 100 μm .

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. Dynamique de formation des chaînes et structures obtenues

Afin de vérifier la dynamique du modèle, l'évolution de la structure des chaînes a été analysée et comparée à de précédentes études expérimentales et numériques. Les particules utilisées sont des poudres de BaTiO_3 d'un diamètre de 0.66 μm . A l'état initial, avant application du champ électrique, les particules sont aléatoirement disposées au sein du volume tel qu'on peut l'observer sur la Fig. 5 sur les images de la colonne de gauche. Après 25 s d'application d'un champ électrique de 600 V/mm, des différences nettes entre les structures formées apparaissent. En effet, à 1 % en volume les particules forment des chaînes isolées d'une seule particule d'épaisseur alors qu'à 10 % en volume les structures sont composées de colonnes et de feuillets de particules (cf. Fig. 5 et 6). Dans cette dernière configuration, les particules adoptent une formation hexagonale. Pour le taux de chargement de 5 % en volume, on observe un comportement à mi-chemin entre les deux précédents cas avec des débuts de colonnes et de feuillets mais aussi des chaînes isolées. Remarquons enfin qu'aux plus forts taux de chargement les chaînes ne sont pas parfaitement alignées dans la direction du champ électrique mais présentent des distorsions dues aux interactions avec les chaînes voisines. Ces résultats concordent avec des observations en microscopie optique réalisées au préalable [4]. La Fig. 6 permet d'observer la forte dépendance des structures obtenues en fonction du taux de chargement. Cette dépendance structurelle en fonction de la fraction volumique de charge a déjà été rapportée par Dassanayake [15] et Park [12]. Une telle correspondance des simulations aux résultats précédents démontre la validité de la représentation du phénomène de chainage sous champ électrique de notre modèle.

3.2. Comparaison de l'évolution de la permittivité obtenue expérimentalement et numériquement

Afin d'étudier si le modèle de chainage est à même de prédire l'évolution de la permittivité lors de la formation des chaînes, nous avons comparé les résultats théoriques et expérimentaux en faisant varier différents paramètres tels que le taux de chargement, la viscosité du milieu ainsi que sa constante diélectrique.

3.2.1. Etude de la différence relative entre la permittivité mesurée et calculée

Le tracé de l'évolution temporelle de la permittivité sur la Fig. 4 (a) met en évidence une limitation majeure du modèle développé. En effet, on observe un décalage important entre la permittivité mesurée et calculée. De plus, les valeurs de permittivité différentes des résines induisent des écarts importants à l'état initial. Afin de permettre la comparaison entre ces différents cas et avec les résultats du modèle, la permittivité a été normalisée (cf. eq. (9)), on observe alors en Fig. 4 (b) que le modèle permet non pas une comparaison quantitative mais qualitative de l'évolution de la permittivité, c'est-à-dire de la dynamique du chainage. Jusqu'à présent la raison exacte de cette différence en amplitude de la permittivité reste obscure.

$$\text{Normalized } \varepsilon'(t) = \frac{\varepsilon'(t) - \varepsilon_{\min}'}{\varepsilon_{\max}' - \varepsilon_{\min}'} \quad (9)$$

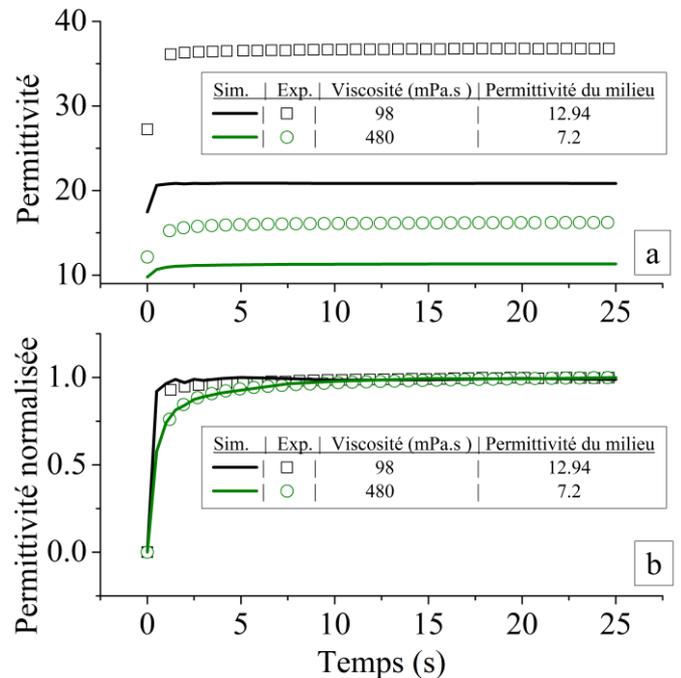


Fig. 4. (a) Permittivité mesurée et calculée pour un mélange époxy/ BaTiO_3 (10 % en volume) pour un champ électrique de 600 V/mm (b) permittivité normalisée mesurée et calculée.

L'augmentation du nombre de particules n'a pas un impact important sur les valeurs de permittivité issues du modèle, le « raffinement » du maillage non plus. Des sources possibles d'erreurs sont la distribution en taille et en forme des particules réelles ainsi que la dépendance en champ électrique de la permittivité du milieu non prises en compte en simulation.

3.2.2. Influence des propriétés du milieu

Un paramètre crucial pour l'élaboration de composites est le type de résine utilisé. Généralement ce choix est fait en prenant en compte le cahier des charges du composite final en termes de rigidité diélectrique, température de fonctionnement, pertes diélectriques etc. Cependant, pour les composites anisotropes, les propriétés mécaniques et diélectriques de la résine influencent aussi la dynamique de formation des chaînes. Il est donc primordial pour le modèle d'être à même de décrire la formation de chaînes en fonction des propriétés du milieu. Les courbes présentées en Fig. 7 montrent une bonne corrélation entre l'évolution temporelle de la permittivité extraite des simulations à celle mesurée et ce pour une large gamme de viscosité.

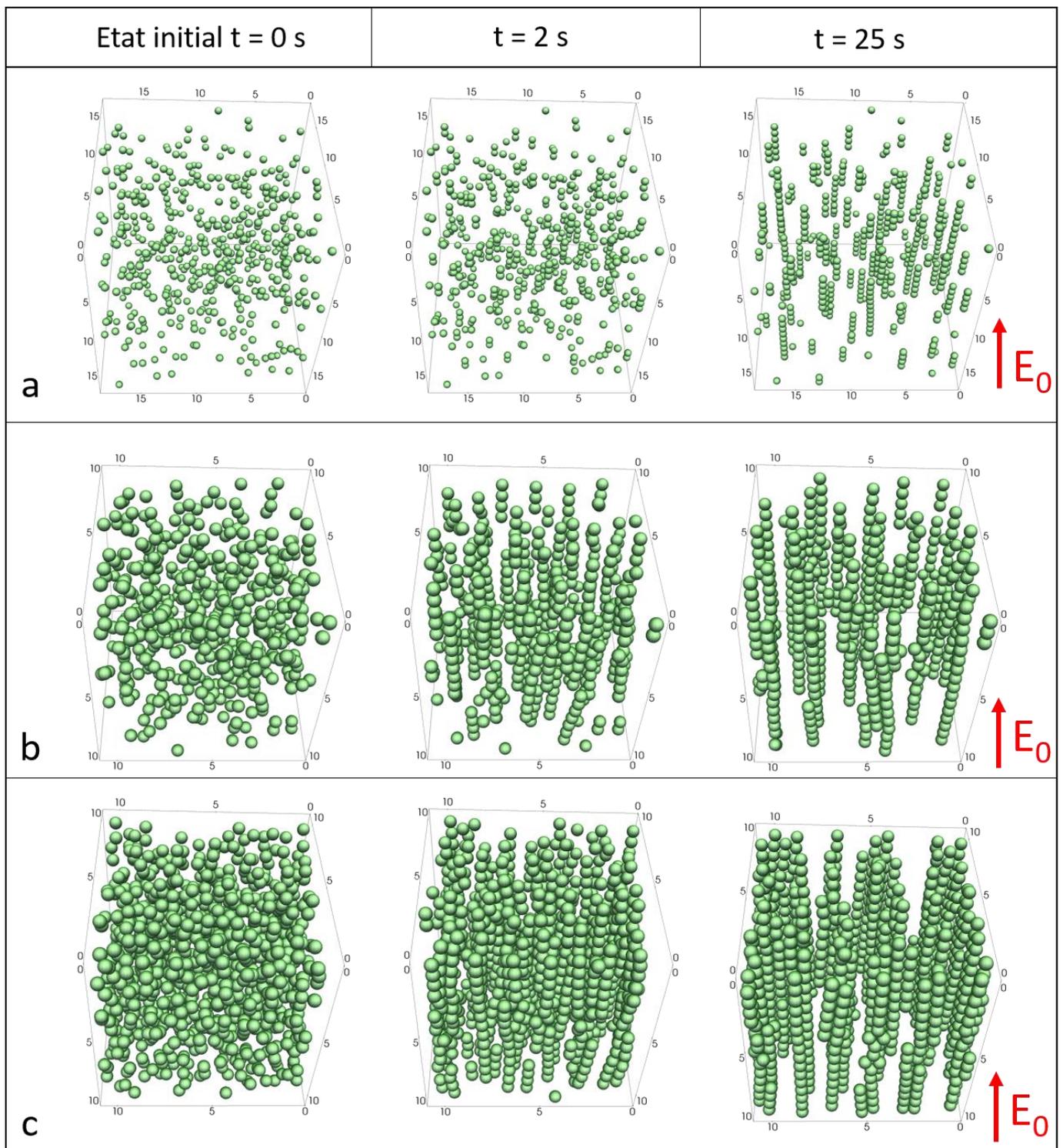


Fig. 5. Images des positions des particules obtenues par simulation pour différents taux de chargement. Champ électrique appliqué 600 V/mm à 1 kHz. Unités des axes en μm . (a) 1 % vol. de BaTiO_3 (b) 5 % vol. et (c) 10 % vol. Viscosité de la résine : 480 mPa.s, permittivité : 7,2.

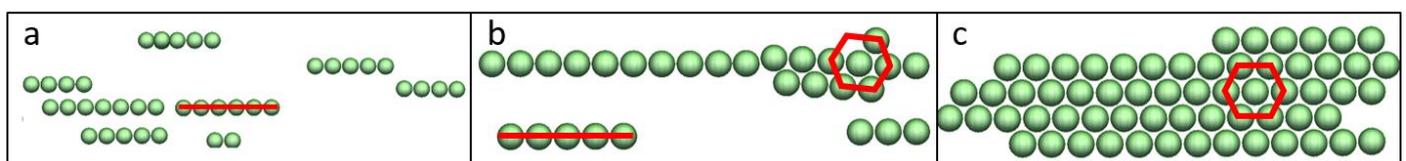


Fig. 6. Structures de particules extraites des simulation tracées en Fig. 1 à t = 25 s. (a) 1 % vol. de BaTiO_3 (b) 5 % vol. et (c) 10 % vol.

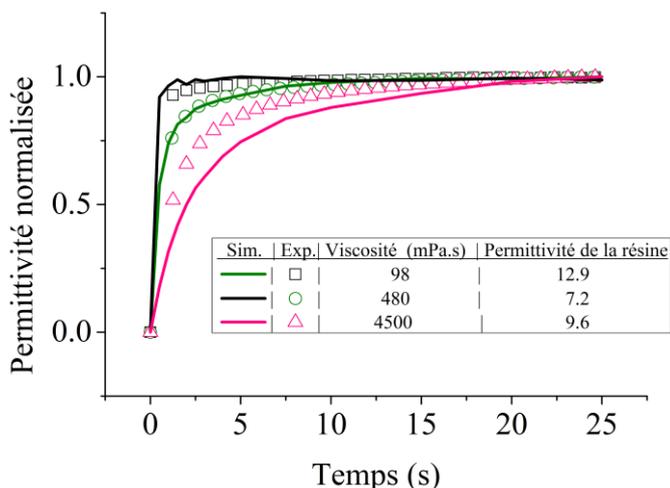


Fig. 7. Permittivité normalisée mesurée et simulée pour des résines avec différentes viscosités et permittivités. Le champ électrique est un créneau de 600 V/mm d'amplitude. Taux de chargement 10 % vol. de BaTiO₃.

3.2.3. Influence du taux de chargement

Dans le but de contrôler la valeur finale d'une propriété d'un composite anisotrope, la fraction volumique de charge est un paramètre clé. On constate à travers l'évolution de la permittivité tracée sur la Fig. 8 que le modèle est moins précis dans ce cas-là. Ce manque de robustesse du modèle pourrait s'avérer être limitant pour son aspect prédictif.

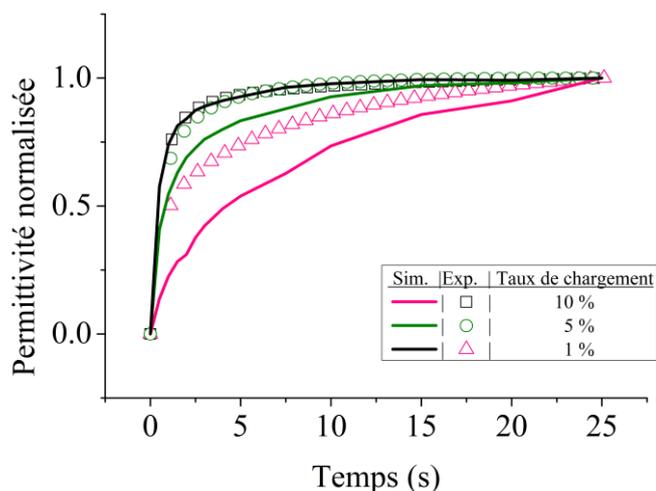


Fig. 8. Permittivité normalisée mesurée et simulée pour différentes fractions volumiques de BaTiO₃. La viscosité de la résine est de 480 mPa.s, sa permittivité de 7,2. Le champ électrique est un créneau de 600 V/mm d'amplitude.

3.2.4. Limitations et perspectives

Le modèle mis au point, bien que relativement précis dans l'ensemble, présente plusieurs limites. L'une d'entre elle porte sur la modélisation des particules par des sphères de diamètres identiques alors que les poudres réelles sont polyédriques et ont une distribution de tailles assez large (mesurée entre 200 nm et 1,2 μm). Ainsi, les particules de taille plus importante dans la distribution pourraient contribuer de façon plus significative à la permittivité globalement plus élevée du composite. Un autre inconvénient de la méthode se produit lorsque le nombre de particules simulées est augmenté, les MEF impliquent de limiter le nombre de tétraèdres utilisés pour discrétiser le domaine afin de conserver des temps de calcul raisonnables. Un maillage plus grossier entraîne une diminution virtuelle du taux de

chargement. Une façon de surmonter cette limitation pourrait être d'utiliser des méthodes par frontière immergée ou par éléments de frontière [16]. Il est important de noter que jusqu'à présent, le modèle développé ne peut pas donner une description quantitative précise de la permittivité des composites, mais une bonne représentation qualitative de leur dynamique.

4. CONCLUSION

Un modèle de chaînage de particules de BaTiO₃ dans une résine époxy liquide soumise à un champ électrique couplé à un calcul par éléments finis de la permittivité a été présenté. Les résultats obtenus décrivent de manière relativement précise la dynamique observée expérimentalement ainsi que les structures géométriques formées que l'on peut trouver dans la littérature. Une imprécision subsiste cependant pour des variations du taux de chargement. Des pistes ont toutefois été discutées afin d'améliorer le modèle. L'approche proposée, fondée sur des méthodes d'éléments finis, devrait pouvoir être adaptée à la prédiction d'autres propriétés telles que les conductivités thermique et électrique des composites. Ce genre de modèle prédictif a sans aucun doute le potentiel pour devenir un outil important pour la conception de matériaux composites anisotropes.

5. REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient l'Institut des Sciences de l'Ingénierie et des Systèmes (INSIS) du CNRS ainsi que l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) pour leur soutien financier apporté à ses travaux. Les auteurs souhaitent également remercier Christophe Louste et Philippe Traoré de l'institut Pprime pour les discussions enrichissantes ainsi que leurs conseils.

6. REFERENCES

- [1] Z.-M. Dang, J.-K. Yuan, J.-W. Zha, T. Zhou, S.-T. Li, et G.-H. Hu, « Fundamentals, processes and applications of high-permittivity polymer-matrix composites », *Prog. Mater. Sci.*, vol. 57, n° 4, p. 660-723, mai 2012.
- [2] S. Ishibe, M. Mori, M. Kozako, et M. Hikita, « A New Concept Varistor With Epoxy/Microvaristor Composite », *IEEE Trans. Power Deliv.*, vol. 29, n° 2, p. 677-682, janv. 2014.
- [3] M. J. Yoo, D. S. Seo, S. H. Kim, et W. S. Lee, « Electric field assembled anisotropic alumina composite for thermal dissipation applications », *J. Compos. Mater.*, vol. 48, p. 201-208, janv. 2012.
- [4] G. Belijar, S. Diahm, Z. Valdez-Nava, et T. Lebey, « Online optical and dielectric monitoring of anisotropic epoxy/BaTiO₃ composite formation tailored by dielectrophoresis », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 49, n° 4, p. 45501, 2016.
- [5] H. Khanbareh, S. van der Zwaag, et W. A. Groen, « Effect of dielectrophoretic structuring on piezoelectric and pyroelectric properties of lead titanate-epoxy composites », *Smart Mater. Struct.*, vol. 23, n° 10, p. 105030, 2014.
- [6] C. Rosales et K. M. Lim, « Numerical comparison between Maxwell stress method and equivalent multipole approach for calculation of the dielectrophoretic force in single-cell traps », *Electrophoresis*, vol. 26, n° 11, p. 2057-2065, juin 2005.
- [7] S. Hu, Y. Zhao, et Y. Yang, « Modeling of cellular pearl chain formation using a double photoconductive layer biochip », *J. Electrostat.*, vol. 77, p. 110-115, oct. 2015.

- [8] J. Kadaksham, P. Singh, et N. Aubry, « Manipulation of particles using dielectrophoresis », *Mech. Res. Commun.*, vol. 33, n° 1, p. 108-122, janv. 2006.
- [9] D. Komesu, M. Mori, S. Ishibe, M. Kozako, et M. Hikita, « Simulation on the microvaristor chain formation in liquid epoxy under electric field », *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, vol. 23, n° 1, p. 216-221, févr. 2016.
- [10] M. Washizu et T. B. Jones, « Dielectrophoretic interaction of two spherical particles calculated by equivalent multipole-moment method », 1994, p. 1483-1490.
- [11] Y. Ai et S. Qian, « DC dielectrophoretic particle-particle interactions and their relative motions », *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 346, n° 2, p. 448-454, juin 2010.
- [12] J. S. Park et D. Saintillan, « Electric-field-induced ordering and pattern formation in colloidal suspensions », *Phys. Rev. E*, vol. 83, n° 4, p. 41409, avr. 2011.
- [13] T. B. Jones, *Electromechanics of Particles*. New York: Cambridge University Press, 1995.
- [14] V. Myroshnychenko et C. Brosseau, « Finite-element method for calculation of the effective permittivity of random inhomogeneous media », *Phys. Rev. E*, vol. 71, n° 1, p. 16701, janv. 2005.
- [15] U. Dassanayake, S. Fraden, et A. van Blaaderen, « Structure of electrorheological fluids », *J. Chem. Phys.*, vol. 112, n° 8, p. 3851-3858, févr. 2000.
- [16] S. Kagami et I. Fukai, « Application of Boundary-Element Method to Electromagnetic Field Problems (Short Papers) », *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.*, vol. 32, n° 4, p. 455-461, avr. 1984.