

Chaînage de particules sous champ électrique alternatif : modèle et expérience

G. Belijar^{1,2}, S. Diahm^{1,2}, Z. Valdez-Nava^{1,2}, L. Laudebat^{1,2,3}, T. Lebey^{1,2} and T. B. Jones⁴

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

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

³Centre Universitaire Champollion ; place de Verdun 81012 Albi, France.

⁴Department of Electrical & Computer Engineering, Rochester University, NY, USA

RESUME – L'étude proposée dans cet article porte sur l'analyse d'un modèle de formation de chaînes de particules de titanate de baryum (BaTiO_3), $D_{50} = 1 \mu\text{m}$, dans un milieu diélectrique à faible viscosité (résine époxy sans durcisseur), sous l'influence d'un champ électrique alternatif (AC). La simulation repose sur le calcul des forces d'interactions diélectrophorétiques permettant la structuration des particules. L'évolution de la géométrie du système dans le temps est couplée au calcul de la permittivité du composite via les équations d'électrostatique. Les résultats obtenus seront ensuite comparés avec des mesures expérimentales, réalisées dans des conditions similaires, afin de mieux comprendre l'impact de la structure des charges sur la permittivité du composite, dans le but d'améliorer la conception des composites structurés.

Mots-clés — Diélectrophorèse, Chaînage, Permittivité, Epoxy/ BaTiO_3

1. INTRODUCTION

L'évolution actuelle des systèmes électroniques, miniaturisation, augmentation des densités de puissance, mène les matériaux et composants à travailler sous des contraintes (électriques, thermiques) toujours plus sévères, tout en devant présenter les meilleurs propriétés possibles. On peut citer en exemple les matériaux polymères que l'on voudrait à la fois isolants électriques et meilleurs conducteurs thermiques, ou encore des matériaux pour le stockage d'énergie présentant des densités d'énergies plus grandes. Dans cette optique les matériaux composites apparaissent comme une voie de recherche prometteuse permettant de bénéficier à la fois des atouts des matrices polymères et des propriétés des particules, qu'elles soient métalliques, céramiques ou à base de carbone. Cependant, pour certaines applications les composites atteignent rapidement leurs limites, notamment par des taux de chargement visés trop élevés qui entraîneraient une dégradation des propriétés mécaniques des tenues en tension trop faibles.

Afin de proposer une alternative à ces limitations, on voit émerger des matériaux dits structurés[1], où les particules sont mises en forme, ce qui permet de diminuer les taux de chargement et/ou de réaliser des fonctions jusque-là impossible à réaliser avec des composites « homogènes » (où la répartition des particules est homogène). La structuration peut s'effectuer par diverses méthodes, toutes reposant sur l'application d'une contrainte lors ou précédant la phase de

durcissement de la matrice polymère. Les contraintes appliquées peuvent être d'ordre mécanique[2], magnétique[3] ou électrique[4]. L'application d'une contrainte électrique, engendrant des interactions diélectrophorétiques entre les particules qui mènent à la formation de chaînes dans la direction du champ électrique, présente l'avantage de fonctionner pour la plupart des types de particules et de matrices. La seule condition étant une différence de permittivité entre le milieu diélectrique et les particules. Bien que cette méthode de fabrication ait été étudiée tant expérimentalement que par simulation, peu de travaux font le lien entre les deux.

Dans le cadre de cet article, une étude en simulation de la formation de chaînes de particules de titanate de baryum (BaTiO_3) dans une résine époxy sous champ électrique AC sera réalisée. Plusieurs configurations typiques de chaînages seront étudiées ainsi que leurs impacts sur la permittivité. Ces résultats seront ensuite comparés avec des mesures expérimentales.

2. METHODE EXPERIMENTALE ET DE SIMULATION

2.1. Modélisation de la formation de chaînes

Le modèle utilisé pour décrire le mouvement des particules est fondé sur la méthode du moment dipolaire effectif [5] basé sur le fait de remplacer une particule sphérique par un dipôle point qui, placé au centre de la particule, produit la même déformation du potentiel électrique. Le moment dipolaire est donné par :

$$\mathbf{p} = 4\pi\epsilon_m K R^3 \mathbf{E}_p \quad (1)$$

avec ϵ_m la permittivité du milieu, K le facteur de Clausius-Mossotti, R le rayon de la particule et \mathbf{E}_p le champ électrique au centre de la particule. Le champ électrique est donné par le théorème de superposition :

$$\mathbf{E}_{p(i)} = \mathbf{E}_{ext} + \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \mathbf{E}_{induit(j,i)} \quad (2)$$

avec E_{ext} le champ électrique extérieur et $E_{induit(j,i)}$ le champ induit par la particule j sur la particule i . L'équation du champ électrique induit par un dipôle peut être trouvée dans la littérature[6]. On peut ensuite déduire les moments de chaque dipôles par résolution matricielle, puis calculer les forces subies par les particules tels qu'exprimées par Kadaksham[7]. L'équation du mouvement est ensuite résolue par la méthode de Runge-Kutta implicite.

Une fois le mouvement calculé, la répartition du champ électrique et du champ de déplacement électrique est extraite par la méthode des éléments finis afin de remonter à la valeur de la permittivité à partir de l'énergie.

2.2. Mesure en temps réel de la permittivité

Afin de mesurer la permittivité du composite au cours de la formation des chaînes, on a déposé le mélange époxy/BaTiO₃ entre deux plaques d'acier inoxydable jouant le rôle d'électrodes. La distance entre les deux électrodes est contrôlée en plaçant des entretoises en Kapton de 100 µm aux quatre coins des plaques[4]. La cellule est ensuite placée dans un système de spectroscopie diélectrique large bande permettant d'appliquer le champ électrique nécessaire à la formation de chaînes et de mesurer en même temps la capacité du mélange et donc de remonter à la permittivité. Dans le cadre de l'étude, un champ électrique de 600 V_{RMS}/mm à une fréquence de 1 kHz a été appliqué.

3. RESULTATS PRELIMINAIRES

Un cas typique de ce que l'on peut observer au cours d'une expérience de formation de chaînes est l'agglomération latérale de chaînes (« zippage »). On peut observer ce phénomène sur la Fig. 1, simulé à l'aide du modèle développé (équations 1 et 2).

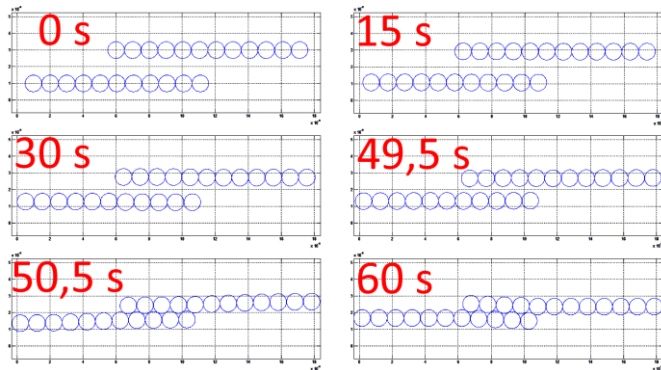


Fig. 1 Simulation temporelle du « zippage » de chaînes de BaTiO₃ dans l'époxy pour un champ de 600 V_{RMS}/mm.

La simulation de la permittivité associée est donnée sur la Fig. 2. On peut observer que le comportement de « zippage » s'accompagne d'une augmentation de la permittivité avec une cassure très nette lors du contact entre les deux chaînes

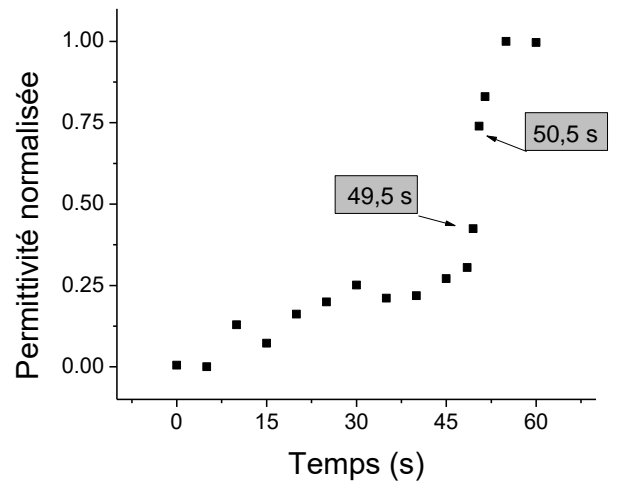


Fig. 2 Evolution de la permittivité lors du « zippage »

Dans la version finale de l'article d'autres phénomènes observés expérimentalement seront reproduits afin de comprendre leurs impacts dans l'évolution de la permittivité. Des mesures de la permittivité nous permettront de confronter le modèle proposé aux relevés expérimentaux.

4. CONCLUSION

Un modèle décrivant le comportement de particules sous l'influence d'un champ électrique a été développé. A l'aide de ce modèle, l'impact de l'agencement des particules sur la permittivité d'un milieu diélectrique a pu être étudié par simulation. Finalement des mesures expérimentales de l'évolution de la permittivité en temps réel permettront de comparer le modèle et l'expérience dans le but d'améliorer la compréhension des phénomènes en jeux lors du chaînage sous champ électrique.

5. REFERENCES

- [1] M. Kozako and Z. Valdez, "Fundamental investigation of dielectric phenomena in epoxy composites during curing process under a uniform electric field", CEIDP, pp. 574-550, 2012.
- [2] H. Tang, Y. Lin, and H. A. Sodano, "Enhanced energy storage in nanocomposite capacitors through aligned PZT nanowires by uniaxial strain assembly", *Adv. Energy Mater.*, vol. 2, no. 4, pp. 469-476, 2012.
- [3] E. L. Bizdoaca, M. Spasova, M. Farle, and M. Hilgendorff, "Magnetically directed self-assembly of submicron spheres with a Fe3O4 nanoparticle shell", *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 240, no. 1-3, pp. 44-46, 2002.
- [4] G. Belijar, S. Diahm, Z. Valdez-Nava, and T. Lebey, "Online optical and dielectric monitoring of anisotropic epoxy/BaTiO₃ composite formation tailored by dielectrophoresis," *Journal of Physics D: Applied Physics*, *Accepté pour publication*.
- [5] T. B. Jones, *Electromechanics of Particles*. New York: Cambridge University Press, 1995.
- [6] D. Griffiths, *Introduction to Electrodynamics*, 4 édition. Boston: Addison-Wesley, 2012.
- [7] J. Kadaksham, P. Singh, and N. Aubry, "Manipulation of particles using dielectrophoresis," *Mech. Res. Commun.*, vol. 33, no. 1, p. 108-122, Jan. 2006.