



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

**UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID - TLEMCCEN**

# MEMOIRE

Présenté à :

FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Pour l'obtention du diplôme de :

**MASTER EN PHYSIQUE**

Spécialité : Physique des polymères

Par :

**KHERBACHE Imane**

Sur le thème

---

## **Comportement thermique et temps de réponse d'un fusible CTP à base de polymère conducteur composite**

---

Soutenu publiquement le 03 juillet 2021 à Tlemcen devant le jury composé de :

KHALDI Smaïn	Professeur	Université de Tlemcen	Président
BOUSAID Abdelhak	Professeur	Université de Tlemcen	Examineur
HAMOUNI Mohammed	Professeur	Université de Tlemcen	Encadreur

*Année Universitaire : 2020/2021*

## **REMERCIEMENTS**

*Ce travail a été réalisé au laboratoire de recherche sur les macromolécules (LRM) de la faculté des sciences de l'Université Aboubkr Belkaïd de Tlemcen sous la direction de monsieur le professeur Mohammed HAMOUNI. Je tiens donc à lui exprimer mes sincères remerciements pour sa modestie et ma profonde gratitude pour son suivi constant et ses orientations fructueuses.*

*Mes plus sincères remerciements vont à monsieur Smaïn KHALDI, Professeur à l'Université de Tlemcen, pour avoir accepté de présider le jury de ce mémoire. Sa présence m'honore.*

*J'exprime ma gratitude envers monsieur Abdelhak BOUSSAID, Professeur à l'Université de Tlemcen, pour avoir accepté de participer à ce jury et avoir évalué ce travail.*

*Enfin, que toute les personnes qui m'apporté aide et soutien, de prés ou de loin, au cours de la réalisation de ce mémoire trouvent, ici, l'expression de mes sincères remerciements.*

## ***Table des matières***

<b>Introduction Générale .</b>	<b>1</b>
Références Bibliographiques	3
<b>1. Chapitre 1 : Concepts Généraux</b>	<b>4</b>
Introduction	4
1. Généralité sur les polymères conducteurs	4
1.1. Découverte des polymères conducteurs	4
1.2. Les grandes familles de polymères conducteurs	5
1.2.1. Les polymères conducteurs intrinsèques	5
1.2.1.1. Méthodes de dopage des polymères conducteurs intrinsèque	6
a) Dopage chimique	7
b) Dopage électrochimique	8
c) Dopage photochimique	8
d) Dopage par injection de charges a l'interface Métal/semi-conducteur	8
1.2.2. Les polymères conducteurs extrinsèques PCE (composites)	8
2. Thermistance	12
2.2. Thermistance à coefficient de température positif	12
2.3. Thermistance à coefficient de température négatif	13
Références Bibliographiques	14
<b>2. Chapitre 2 : influence de la taille des particules de renfort sur le comportement thermique et le temps de réponse d'un fusible CTP a base de polyéthylène haute densité</b>	<b>16</b>
Introduction	16
1. Modélisation: forme géométrique et tailles retenues	16
2. formalisme mathématique	17
2.1. Distribution de la température dans la direction Y du courant électrique	17
2.2. Temps de basculement	22

2.3. Distribution de température dans la direction x .....	26
Références bibliographiques .....	31
<b>3. Chapitre 3 : Effet de la matrice sur le phénomène de transition état conducteur- état isolant d'un polymère conducteur composite.....</b>	<b>32</b>
Introduction.....	32
1. Description de phénomène .....	32
2. Transfert de chaleur dans la direction y .....	34
3. Transfert de chaleur dans la direction x .....	38
Références bibliographiques .....	41
<b>Conclusion Générale et perspectives .....</b>	<b>42</b>

# INTRODUCTION GENERALE

## INTRODUCTION GENERALE

Un polymère est une macromolécule constituée de longue chaîne de molécules semblables et répétitives, appelées monomères. Dans le cas où ces unités sont de même nature on dit que cette macromolécule est homopolymère et dans le cas contraire (de nature différente) la macromolécule est copolymère. La cohésion des atomes sur une même chaîne est assurée par des liaisons chimiques fortes, tandis que les liaisons interchaînes sont plus faibles. La présence de ces liaisons (faibles et fortes) apporte aux matériaux de polymère des propriétés physicochimiques particulières [1].

Les polymères ont pris depuis un siècle une importance de plus en plus grande dans notre quotidien. On les retrouve essentiellement dans les plastiques, dans les textiles, dans les peintures et dans les colles. Ils ont également investis des domaines d'applications qui ne leur étaient pas destinés en raison de leurs propriétés mécaniques et isolantes. Ils ont remplacés progressivement les matériaux composites classiques et se sont positionnés en sérieux concurrents des métaux et semi-conducteurs classiques une fois modifiés [2].

Un polymère conducteur est une macromolécule qui a la particularité de transporter des charges électriques (électrons ou trous). Pour être conducteur, un polymère doit être conjugué c'est-à-dire qu'il doit comporter une alternance de liaisons simples et de liaisons doubles [3].

Les polymères conjugués ou conducteurs ont émergé comme classe fortement prometteuse des matériaux pour des applications divers. Leurs propriétés physiques et chimiques les rendent particulièrement attrayants. Ce domaine de recherche très dynamique existe depuis environ 25ans [4].

Les polymères organiques conducteurs font partis d'une nouvelle classe de matériaux qui ont été introduits dans les dispositifs électroniques et optiques. Ont permis d'élargir le champ d'applications électroniques et électrochimiques ce qui permet leur utilisation comme afficheurs électrochromes (écrans plats, diodes), dans le stockage de l'énergie (batteries et piles au lithium), la protection des métaux contre la corrosion, l'électrocatalyse et dans la fabrication des composants électroniques, les capteurs à gaz, biocapteurs (analyse d'ADN, de protéines...) et l'optique non linéaire.

Parmi les polymères organiques conducteurs conjugués les plus utilisés nous pouvons citer, le polyacétylène, le polythiophène, le polypyrrole, la polyaniline, ect [5].

Les composites polymères conducteurs (CPC) sont obtenus en dispersant des charges conductrices (particules métalliques, noirs ou fibres de carbone), dans une matrice isolante polymère à une teneur supérieure au seuil de percolation. Ces matériaux trouvent de nombreuses applications découlant de la variation de leur résistivité en fonction de sollicitations thermiques.

Le présent travail, est une contribution à l'étude de comportement thermique et temps de réponse d'un fusible CTP à base de polymère conducteur composite.

Nous examinons les effets de la taille des particules conductrices et de la nature de la matrice de polymère sur le temps nécessaire au basculement de l'état conducteur à l'état isolant.

Ce mémoire est divisé en trois chapitres.

**Le premier chapitre**, est une présentation des concepts scientifiques fondamentaux que nous avons utilisés dans notre mémoire. Nous présenterons les deux grandes familles des polymères conducteurs, leurs propriétés et leurs méthodes de dopage. Nous rappelons aussi les notions de thermistance, thermistance à coefficient de température positif (CTP) et thermistance à coefficient de température négatif (CTN).

**Le deuxième chapitre**, traite les effets de la taille des particules conductrices sur le comportement thermique et le temps de réponse d'un fusible CTP à base d'un polymère conducteur composite constituée d'une matrice en polyéthylène haute densité dans laquelle sont noyées des particules en noir de carbone avec différentes tailles.

**Le troisième chapitre**, est consacré à l'effet de la nature de polymère utilisée comme matrice sur le comportement thermique et le temps de basculement état conducteur - état isolant dans les matériaux composites de type polymère conducteur.

Ce manuscrit s'achève par une conclusion générale sur les différents résultats obtenus, les questions résolues et les perspectives.

## Références bibliographiques

1. Mohammed HAMOUNI, Polymères en solution, cours master 1 physique des polymères, 2019.
2. Hattab Youcef, Etude de l'évolution des propriétés électriques et thermiques de nanocomposites polymères - Argiles en milieux agressifs, Thèse de doctorat, université des sciences et de la Technologie d'Oran.
3. Hamouni Mohammed, étude théorique du polymère conducteur, cours master 2 physique des polymères, 2020.
4. Yemouna Madaoui, synthèse et caractérisations des polymères conducteurs composites Polypyrrole/ Maghnite, université d'Oran Es-Senia.
5. Leila Lamiri, Analyse des propriétés électrochimiques et spectroscopiques des films de polymères conducteurs issus de l'électrocopolymérisation d'hétérocycles pentagonaux (thiophène, pyrrole, furanne), Université Ferhat Abbas – Setif, 2011.



**CHAPITRE 1**  
**CONCEPTS GENERAUX**

## INTRODUCTION

Les polymères conducteurs ont reçu une grande attention grâce à leurs propriétés physico-chimiques et électrochimiques très intéressantes, et de nouveaux avis dans le domaine de matériaux et dans celui des électrodes modifiées. Grâce à leurs propriétés mécaniques extraordinaires, leurs résistances à la corrosion et leurs faibles coûts, les polymères sont capables de compléter ou remplacer les matériaux métalliques. Ils peuvent être synthétisés par voie électrochimique et sont utilisés dans différents domaines de la vie quotidienne [1]. Dans ce chapitre, nous présentons des concepts généraux sur les polymères conducteurs intrinsèques et extrinsèques, ainsi que des généralités sur la thermistance à coefficient de température positif (CTP) et la thermistance à coefficient de température négatif (CTN).

## 1. GENERALITES SUR LES POLYMERES CONDUCTEURS

### 1.1. Découverte des polymères conducteurs

En 1958, le chimiste italien Natta prépare, pour la première fois, le polyacétylène  $(CH)_x$  à alternance de simples et doubles liaisons. Ces molécules sont alors présentées comme des candidats potentiels à la conduction organique [2].

En 1961, Hatano et ses collaborateurs à Tokyo ont tenté de produire des films de polyacétène. Dix ans plus tard, Shirakawa et Ikeda ont réalisé des films de polyacétylène-cis qui pouvaient être convertis en leur forme trans. Dans ces années, de nouveaux travaux sont entrepris sur la polyaniline. Des chercheurs français présentent en 1971 une étude des propriétés de la conductivité électrique en fonction des conditions de préparation [2].

En 1974, les travaux sur les polymères conducteurs ont pris une importance exceptionnelle qui les place parmi les sujets de pointe de la recherche en science des matériaux. Cette année, le japonais Shirakawa de l'institut de technologie de Tokyo, et son collaborateur Ikeda réussirent pour la première fois à synthétiser du polyacétylène sous forme de film. Cependant, ce matériau n'est pas encore conducteur et il faut attendre l'année 1977 pour que l'équipe de A. J. Heeger dope le polyacétylène avec de puissants donneurs ou accepteurs d'électrons. Les polymères conducteurs intrinsèques sont alors, nés et un avenir prometteur s'ouvre à eux [2].

Dans les années 1980, de nouveaux polymères conducteurs sont étudiés, les exemples les plus connus étant le polypyrole, le polythiophène et la polyaniline. Les progrès dans la chimie de ces matériaux sont tels que les années 1990 voient l'apparition de polymères solubles ou fusibles ce qui leur ouvre des perspectives d'applications inespérées du fait de leur forme maîtrisable. De plus dans le cas du polyacétylène, la conductivité électrique rapportée à l'unité de masse peut dépasser celle du cuivre [2].

Parmi les nouvelles applications les plus prometteuses, l'utilisation des polymères conducteurs pour la fabrication de diodes et de transistors organiques, déjà disponibles sur le marché, beaucoup d'autres applications sont à l'étude : écrans couleurs flexibles enroulables, cellules photovoltaïques, lasers, biocapteurs, capteurs de gaz, puces organiques... [2].

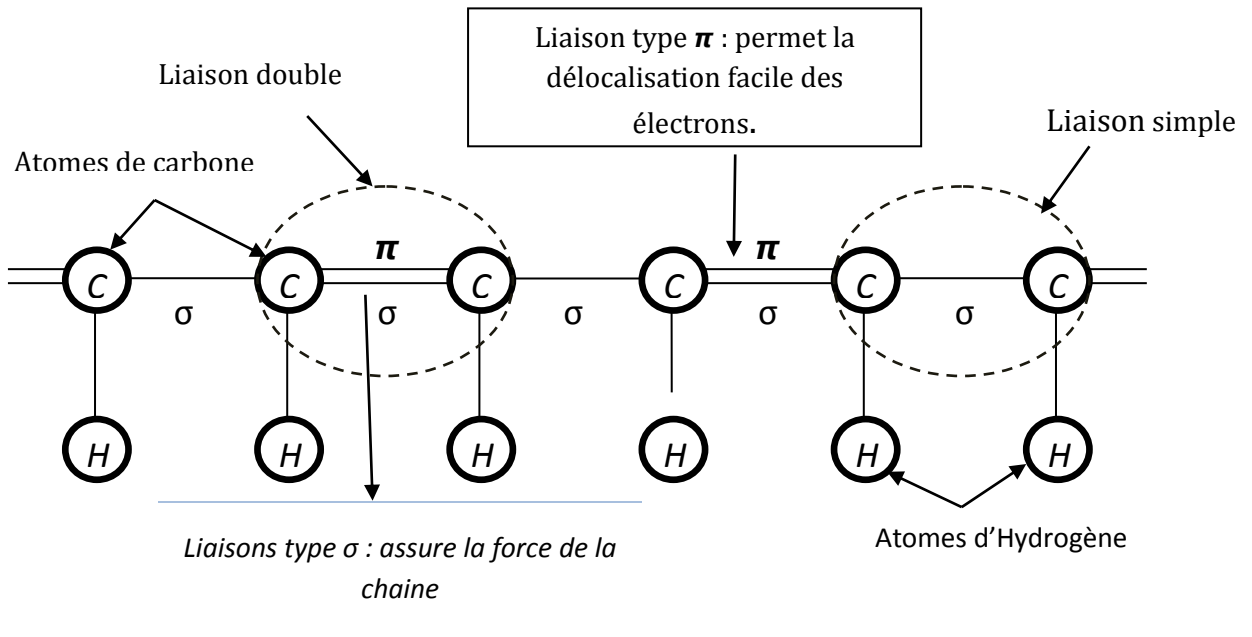
En 2000, ces trois chercheurs ont reçu le prix Nobel de chimie pour leur découverte et leur étude des polymères conducteurs [3].

## **1.2. Les grandes familles de polymères conducteurs**

Il existe deux grandes familles de polymères conducteurs: Les polymères conducteurs intrinsèques PCI (polymères conducteurs conjugués) et Les polymères conducteurs extrinsèques PCE (polymères conducteurs composites).

### **1.2.1. Les polymères conducteurs intrinsèques**

Tous les polymères conducteurs intrinsèques sont réalisés à partir de matériaux polymères conjugués. Il s'agit de polymères qui ont la particularité de se présenter sous la forme de molécules reliées par une alternance de liaisons simples  $\sigma$  qui assure la force de la chaîne et de liaisons doubles  $\pi$  (plus faible que  $\sigma$ ) qui permet la délocalisation facile des électrons (figure 1). Dans cet état, les polymères conducteurs intrinsèques possèdent des propriétés qui se rapprochent de celles des semi-conducteurs classiques. Pour les rendre conducteurs on utilise le dopage [4].



**Figure1 : chaîne conjuguée contenant des alternances des liaisons simples et doubles [4]**

### 1.2.1.1. Méthodes de dopage des polymères conducteurs intrinsèque

Dans le dopage des semi-conducteurs classiques (inorganiques), consiste à introduire des impuretés donneuses (dopage de type n), ou accepteuses (dopage de type p) dans le matériau. Du fait de rigidité du réseau cristallin, le diagramme des bandes du matériau n'est pas modifié et le dopage n ou p revient à introduire dans le bas de la bande de conduction (ou dans le haut de la bande de valence) des électrons ou des trous délocalisés. Dans un semi-conducteur extrinsèque inorganique, la conductivité électrique  $\sigma$  est essentiellement liée à la densité de porteurs de charges. Le terme « dopage » a été étendu aux polymères conducteurs puisqu'ils passent de l'état semi-conducteur à l'état conducteur [5]. Le dopage des polymères conjugués est une variable réaction d'oxydo - réduction du polymère. Il consiste à introduire, par voie électrochimique ou chimique, des espèces accepteuses (dopage de type p réalisé par des oxydants) ou donneuses d'électron (dopage de type n réalisé par des réducteurs) au voisinage des chaîne macromoléculaires conjugués. On fait ainsi ajouter des charges électriques sur les chaînes ce qui résulte une augmentation forte de la

conductivité électrique de polymère jusqu'à elle atteindre des valeurs proches de celle des métaux [5] (voir la figure 2).

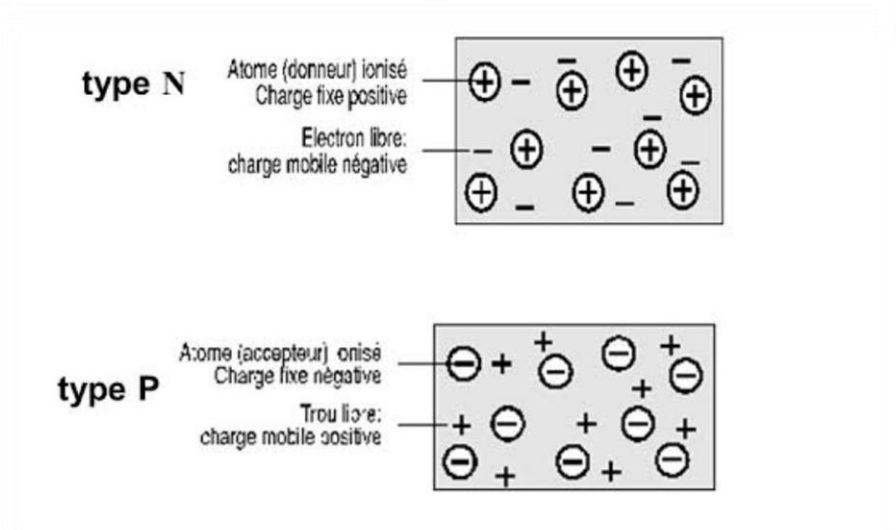
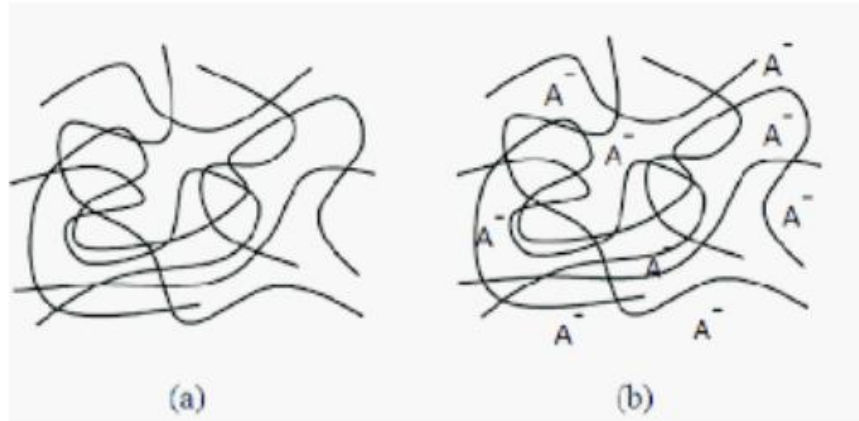


Figure 2: Représentation schématique de la différence entre le dopage de type n et de type p

Le dopage peut être effectué selon plusieurs méthodes: dopage chimique, électrochimique, photochimique ou dopage par injection de charges à l'interface Métal/Semi-conducteur.

#### a) Dopage chimique

Il s'agit d'un dopage redox par transfert de charges entre le dopant et les chaînes du polymère conjugué. Au cours du dopage, il y a une transformation d'électrons, ce qui modifie le nombre total d'électrons  $\pi$  de ses derniers. Comme toute réaction d'oxydoréduction, ce dopage est réversible [5].



*Figure 3: processus de dopage d'un polymère conducteur; (a) polymère conjugué non dopé, (b) polymère conjugué dopé [3].*

### **b) Dopage électrochimique**

Le dopage électrochimique a été utilisé pour parvenir à dopé partiellement et de manière homogène un polymère conducteur, (difficilement contrôlable par le procédé de dopage chimique). Dans ce type de dopage, l'électrode injecte la charge redox dans le polymère conducteur, alors que les ions diffusent à travers la structure polymère de l'électrolyte pour compenser la charge électronique. Le taux de dopage à l'équilibre électrochimique est défini par la tension entre le polymère et la contre- électrode [5].

### **c) Dopage photochimique**

Le polymère semi-conducteur est localement oxydé et réduit par photo-absorption et séparation de charge. Il y a aussi création de paires électron-trou et séparation en porteurs de charge libres. A l'issue de cette photo-excitation, une recombinaison peut avoir lieu. Elle peut être radiative donnant ainsi naissance à une photoluminescence (poly (p-phényle vinyle ne), poly p-phényle phénol) ou pas (polyacétilène, poly thiophène) [5].

### **d) Dopage par injection de charges a l'interface Métal/semi-conducteur**

Les électrons et les trous peuvent être injectés à partir de contacts métalliques respectivement dans les bandes  $\pi^*$  et  $\pi$  du polymère conjugué. Le polymère est alors oxydé (les électrons sont ajoutés dans la bande  $\pi^*$ ) ou réduit (les électrons sont

éliminés de la bande  $\pi$ ). C'est le contraire de dopage chimique ou électrochimique, il n'y a pas d'introduction de contre ions en utilisant cette méthode [5].

### 1.2.2. Les polymères conducteurs extrinsèques PCE (composites)

Un polymère conducteur composite consiste dans le cas le plus générale d'une ou plusieurs phases discontinues dispersées dans une phase continue. La phase continue est appelée **matrice** et la phase discontinue est appelée **renfort** (inclusions conductrices) dispersées dans une matrice isolante [2] (voir figure 4). Dans le cas de plusieurs phases discontinues de nature différentes; le matériau est appelé hybride.

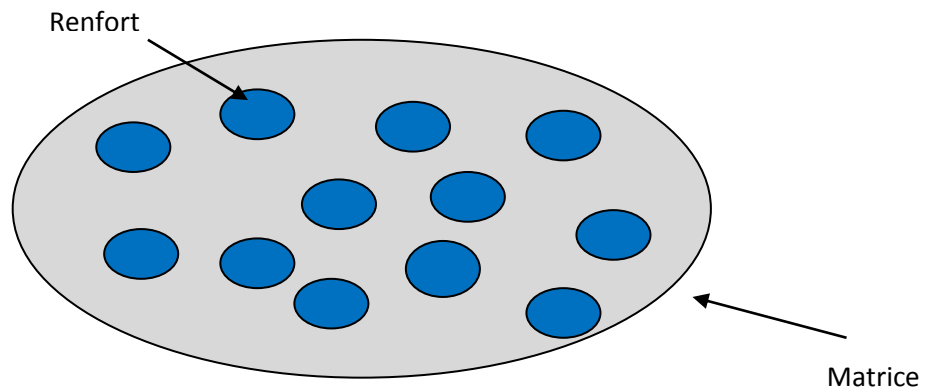


Figure 4: Polymère conducteur composite

Dans les polymères conducteurs composites, la conductivité électrique est assurée par la formation des chemins conducteurs à partir des inclusions conductrices. La transition de l'état isolant à l'état conducteur est interprétée par la théorie de percolation comme le montre la figure 5 [3].

La conductivité électrique dépend de la fraction volumique des particules conductrices. Elle est proche de celle du polymère pour les faibles fractions volumique des inclusions conductrices et augmente rapidement au voisinage d'une fraction critique, appelé **seuil percolation** pour atteindre celle des particules conductrices [2]. La valeur du seuil de percolation dépend de la nature des inclusions conductrices, de leurs formes géométriques ainsi que de leurs tailles [6]. Par exemple, pour un même

élément apporté, on peut trouver des seuils de percolation plus faible pour des fibres conductrices logues et fines que pour des sphères conductrices [6].

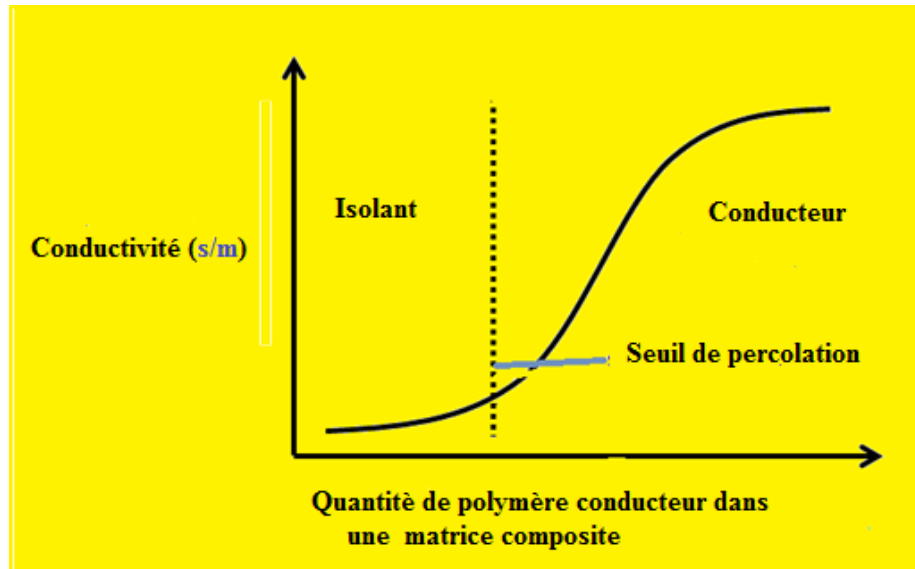
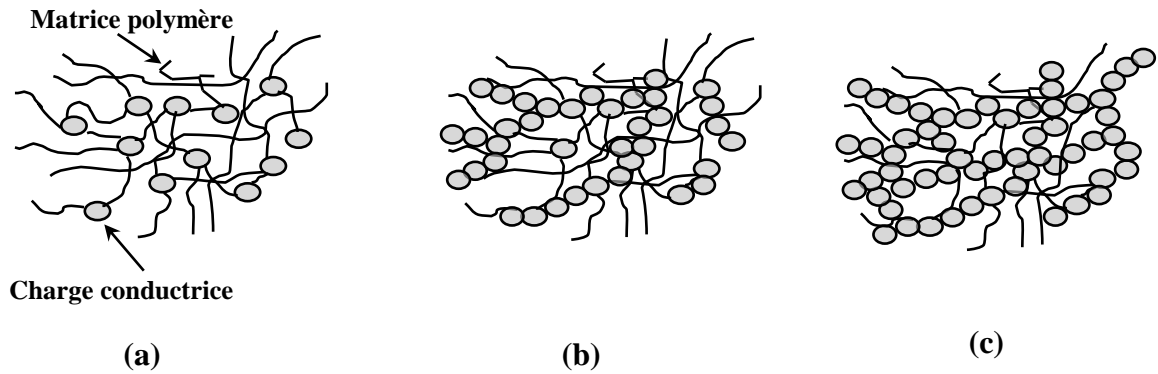


Figure 5: conductivité électrique d'un polymère conducteur  $\sigma$  en fonction de la fraction volumique  $\Phi$  des inclusions conductrices [2]

- **Phénomène de percolation**

Au –dessous de la fraction volumique critique ( $\Phi < \Phi_c$ ), le nombre des particules conductrices n'est pas suffisant pour former un chemin conducteur continu, la conductivité du polymère conducteur composite est donc presque identique à celle du polymère isolant [2] (figure 6(a)). Au niveau de la fraction volumique critique ( $\Phi = \Phi_c$ ), correspond à la formation du premier chemin conducteur au sein du polymère conducteur composite, le matériau passe de l'état isolant à l'état conducteur [3] (figure 6(b)). Au dessus de la fraction volumique critique ( $\Phi > \Phi_c$ ), les inclusions conductrices sont assez proche les unes des autres et le nombre de chemins conducteurs va augmenter ce qui provoque une augmentation de la conductivité électrique [3] (figure 6(c)). Au seuil de saturation ( $\Phi = \Phi_s$ ), le nombre maximal des chemins conducteurs au sein de matériau composite est atteindre, et la conductivité électrique du composite reste presque constante [3].





**Figure 6: Description de la dispersion des particules dans la matrice polymère**  
 (a): ( $\Phi < \Phi_c$ ), (b): ( $\Phi = \Phi_c$ ), (c): ( $\Phi > \Phi_c$ )

La conductivité électrique, noté  $\sigma$  est s'exprime en ( $1/\Omega .m$ ) ou ( $s/m$ ), est l'aptitude d'un matériau à laisser les charges électrique se déplacer librement, autrement dit à permettre le passage des courants électriques. La conductivité dépend de la densité de porteurs de charges et de leurs mobilités dans le matériau considéré. Dans les métaux, les porteurs de charge à considérer sont les électrons. Par contre, la disparition de la haute intensité permettra à la matrice de polymère à retrouver sont état initial, la résistance électrique diminue et le courant électrique.

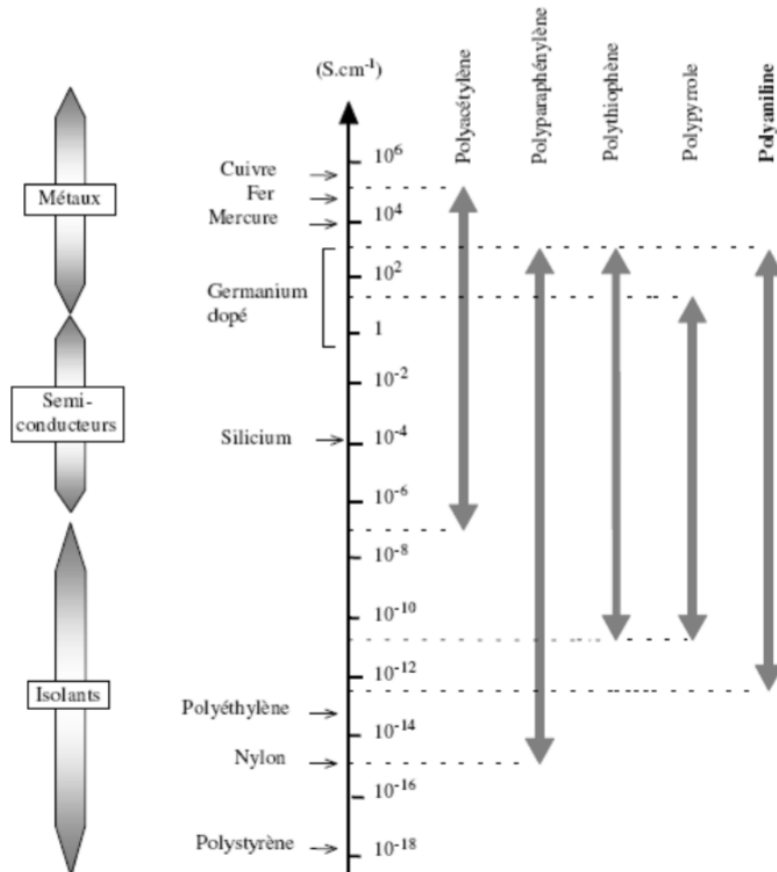


Figure 7: conductivité électrique de polymères conducteurs intrinsèques comparées à celles de polymères isolants et de quelques conducteurs non polymères [5].

## 2. Thermistances

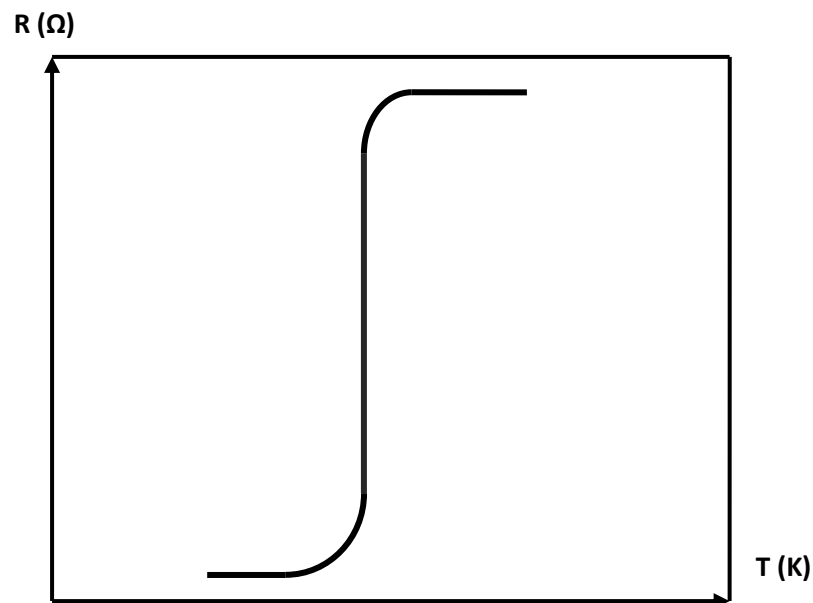
La thermistance est une résistance thermique sensible à l'influence de la température. Il existe deux types de thermistance : thermistance à coefficient de température positif CTP et thermistance à coefficient négatif CTN [1].

Chaque type est conçu dans un matériau différent qui réagit à la température d'une manière spécifique [6].

### 2.1. Thermistance à coefficient de température positif (CTP)

Dans ce type de thermistance, la résistivité augmente brusquement avec l'augmentation de la température à partir d'un certain seuil (figure 8). L'augmentation de la température à lieu entre deux température relativement proches (50K) ; en dehors de ce domaine, le coefficient de la température est négatif ou nul [2]. Les CTP,

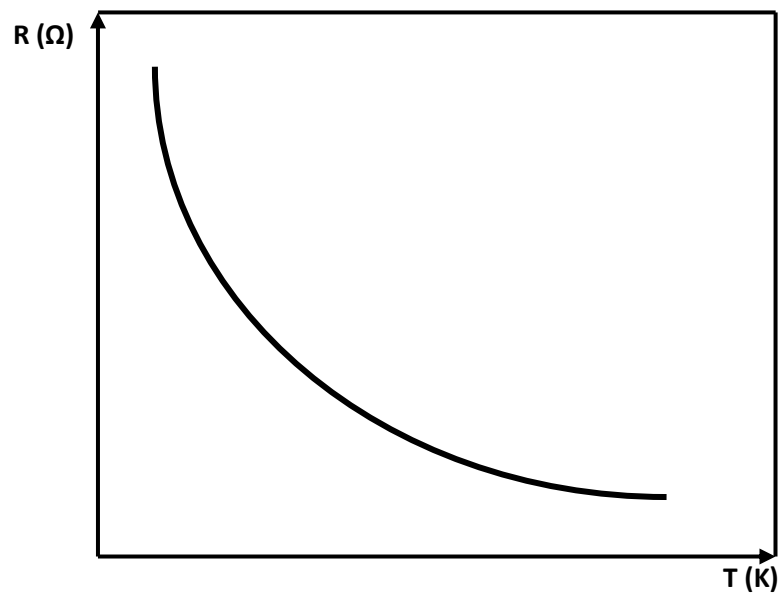
sont utilisées pour la protection des circuits d'alimentation contre les courts-circuits (appels de courant de démarrage d'un moteur électrique par exemple); la CTP est placée en série avec le circuit d'utilisation de sorte qu'en présence d'un excès de courant le traversant, elle s'échauffe et la résistance augmentant, elle limite alors le courant [2].



*Figure 8 : Variation de la résistance électrique en fonction de la température d'une thermistance à coefficient de température positif (CTP) [2]*

## 2.2. Thermistance à coefficient de température négatif (CTN)

Dans ce type de thermistance, la résistivité diminue d'une manière monotone, quand la température augmente, cette diminution a lieu sur un grand domaine de température (300K) (figure 9). De tels composants, sont constitués d'un matériau céramique à bases d'oxydes métalliques [2].



**Figure 9 : Variation de la résistance électrique en fonction de la température d'une thermistance à coefficient de température négatif (CTN) [2]**

Dans les deux cas (CTN et CTP), la variation de la résistance en fonction de la température est donnée par [2] :

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \alpha \Delta T \quad (1-1)$$

Où

$$R = R_0 [1 + \alpha(T - T_0)] \quad (1-2)$$

Où  $\alpha$  est le coefficient de la température ; il est négatif dans le cas du CTN et positif dans le cas du CTP.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. Mama El Rhazi, les polymères conducteurs, Article, Laboratoire d'Electrochimie et de Chimie Physique, Faculté des sciences et Techniques-BP 146, Mohammedia. Maroc, 2008.
2. Hamouni Mohammed, contribution à l'étude de la conductivité électrique des polymères conducteurs : cas du polymère conducteur composite Polyéthylène/Diborure de Titane (PE/TiB<sub>2</sub>), Thèse de doctorat en physique, université Abu Bakr belkaid, Novembre 2005.
3. Benkhelifa Ahlam, contribution à l'étude théorique des propriétés thermoélectriques des polymères conducteurs, Mémoire de master en physique des polymères, université Abu Bakr belkaid, juillet 2019.
4. Thanh - Hai Le, Yukyung Kim, and Hyeoseok Yoon, Electrical and Electrochemical properties of conducting polymers, Inherent molecular structure, 2017; 2 : 1-32.
5. Nadra et BOHLI, étude physique de la formation de films a base de polymères conducteurs et applications en micro-électronique, école doctorale des sciences physiques et de l'ingénieur, université Bordeaux 1, 2009.
6. Ashley Awalt, principe de base des thermistances CTN et CTP, Digi-Key, 2011
7. Yemouna Madaoui, synthèses et caractérisations des polymères conducteurs composites Polypyrrole/Maghnite, mémoire de magister, Université d'Oran Es-SENIA, chimie des polymères.
8. Mohammed HAMOUNI, étude théorique des polymères conducteurs, cours master 2 physique des polymères, 2020.



## CHAPITRE 2

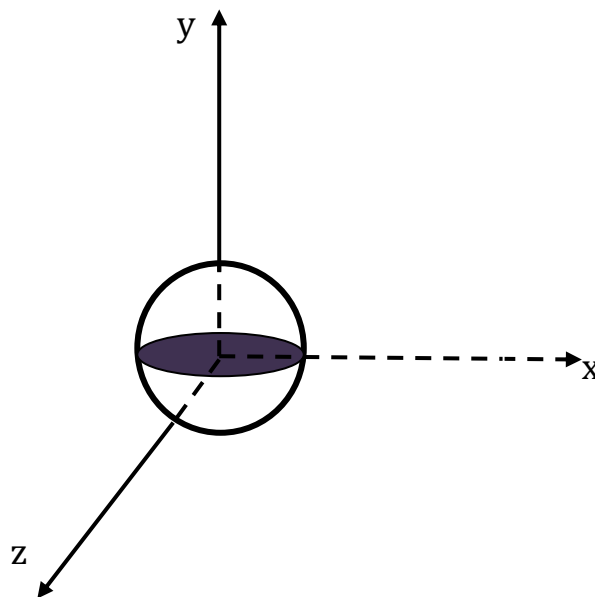
# INFLUENCE DE LA TAILLE DES PARTICULES DE RENFORT SUR LE COMPORTEMENT THERMIQUE ET LE TEMPS DE REPONSE

## Introduction

Dans ce chapitre, nous examinons l'effet de la taille des particules conductrices sur le temps de transition état conducteur - état isolant d'un polymère conducteur composite formé d'une matrice en polyéthylène haut densité dans laquelle sont dispersés des particules en noir de carbone avec différentes tailles (HDPE / NC). La fraction volumique des inclusions conductrices dans le polymère conducteur composite égale à la fraction volumique critique  $\Phi_c$  (seuil de percolation).

### 1- Modélisation

Afin de réaliser ce travail, nous avons utilisé des particules en noir de carbone comme inclusions conductrices. Nous avons assimilé ces particules conductrices à des sphères avec différentes tailles :  $r_1 = 50 \mu\text{m}$ ,  $r_2 = 100 \mu\text{m}$  et  $r_3 = 150 \mu\text{m}$ . Dans ces conditions, les trois particules conductrices de taille différente, génèrent lors du passage de courant électrique une chaleur volumique différente.



*Figure 1 : Particule de renfort de forme sphérique*

Les particules conductrices de renfort sont supposées distribuées dans un réseau à trois dimensions.



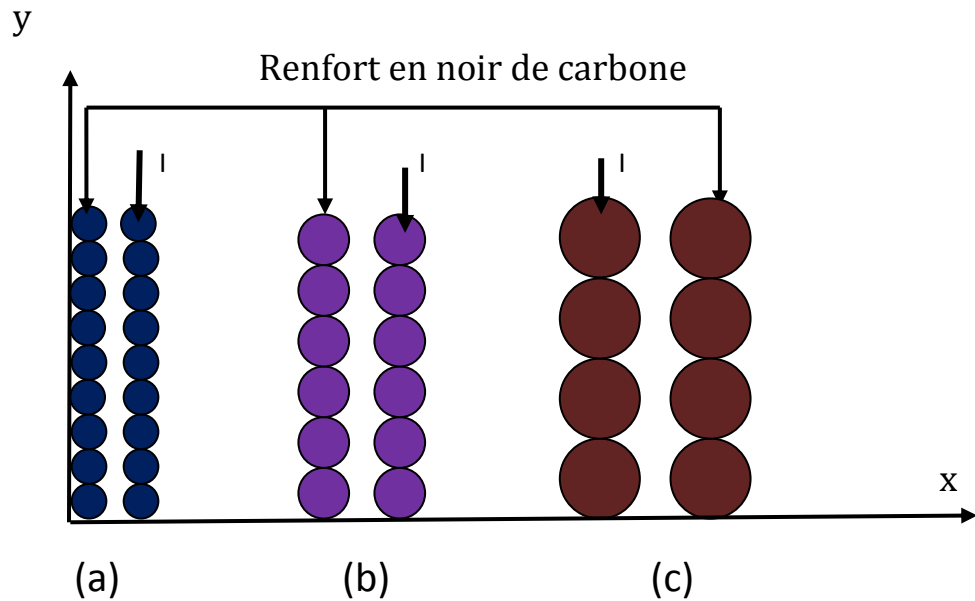


Figure 2 : configuration des chaînes des particules conductrices

## 2- Formalisme mathématique

Dans les trois configurations que nous avons adoptés, chaque particule du noir de carbone, indépendamment de sa taille, possède deux point de contact avec ses proches voisines [1] de manière à participer à la formation d'un chemin conducteur à axe principal parallèle à l'axe oy du trièdre de référence (figure 2). Au cours du temps, le transfert de chaleur dans le matériau composite de type polymère conducteur est gouverné par conduction thermique dans la direction y du courant électrique et la direction X qui lui perpendiculaire [1].

### 2.1. Distribution de la température dans la direction Y du courant électrique

L'équation du transfert de chaleur par conduction thermique au sein du polymère conducteur composite dans la direction y du courant électrique est donnée par [1] :

$$Q(y) = \rho C \frac{\partial T(y,t)}{\partial t} - \lambda \frac{\partial^2 T(y,t)}{\partial y^2} \quad (2-1)$$

Avec  $C$ ,  $\lambda$  et  $\rho$  sont respectivement sa capacité thermique, sa conductivité thermique et sa masse spécifique,  $T$  est la température absolue,  $t$  le temps et  $Q(y)$  la quantité de chaleur dégagée localement suivant la direction y par effet Joule.

Par l'utilisation du modèle de Maxwell- Eucken [2], on exprime la conductivité thermique de notre polymère conducteur composite en fonction des conductivités thermiques des deux constituants :

$$\lambda = \frac{2\lambda_{mat} + \lambda_{renf} + 2\Phi_{renf}(\lambda_{renf} - \lambda_{mat})}{2\lambda_{mat} + \lambda_{renf} - \Phi_{renf}(\lambda_{renf} - \lambda_{mat})} \lambda_{mat} \quad (2-2)$$

Où,  $\lambda_{mat}$  et  $\lambda_{renf}$  sont respectivement la conductivité thermique de la matrice de polymère et celle de renfort,  $\Phi_{renf}$  est la fraction volumique du renfort dans le matériau composite.

Selon la loi des mélanges, la masse volumique du polymère conducteur composite est déterminée à partir des masses volumiques de ses deux constituants [3] :

$$\rho = \rho_{mat} + (\rho_{renf} - \rho_{mat}) \Phi_{renf} \quad (2-3)$$

Où  $\rho_{mat}$  et  $\rho_{renf}$ , sont respectivement la masse volumique de la matrice et celle de renfort.

Par analogie à la loi des masses utilisée précédemment pour la détermination de la masse volumique, on exprime la capacité thermique de ce composite par la relation (2-4) [4]:

$$C = C_{mat} + (C_{renf} - C_{mat}) \Phi_{renf} \quad (2-4)$$

Avec  $C_{renf}$  et  $C_{mat}$  sont respectivement la capacité thermique de renfort et celle de la matrice.

En appliquant le modèle de Strümpfer [1], nous exprimons la quantité de chaleur  $Q(y)$  dégagée localement suivant la direction  $y$  du courant électrique sous la forme d'une somme d'un nombre infini de distributions,  $\delta$ , de Dirac de période  $2r$  :

$$Q(y) = q_0 + q_1 \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta(y + 2nr) \quad (2-5)$$

Par ailleurs, nous considérons que l'échauffement de ce matériau composite est homogène et développons  $Q(y)$  en série de Fourier [4] :

$$Q(y) = q_0 + \frac{q_1}{r} h(y) \quad (2-6)$$

Où

$$h(y) = \left( \frac{1}{2} + \sum_{n=1}^{\infty} \cos(n\pi \frac{y}{r}) \right) \quad (2-7)$$

$q_0$ , représente la densité de flux thermique dégagée par le volume de chaque particule,  $q_1$  celle dégagée au niveau de chaque contact ponctuel entre les particules et  $r$ , étant le rayon de la particule de renfort. Compte tenu de ces hypothèses, la distribution spatio-temporelle de la température dans le polymère conducteur composite, suivant la direction  $y$  peut être décrite par une série de Fourier comme suit [1]:

$$T(y, t) = T_a + \sum_{n=0}^{\infty} T_n(t) \cos(n\pi \frac{y}{r}) \quad (2-8)$$

Où,  $T_a$  c'est la température ambiante supposée constante et  $T_n(t)$  c'est une fonction du temps  $t$ .  
En remplace  $Q(y)$  et  $T(y,t)$  par leurs expressions dans l'équation (2-1), nous obtenons:

$$\frac{\partial T_0(t)}{\partial t} = \frac{2r q_0 + q_1}{2r\rho C} \quad (2-9)$$

Et

$$\frac{\partial T_0(t)}{\partial t} + A_{ny} T_n = B_y, \text{ pour } n \geq 1 \quad (2-10)$$

Où

$$A_{ny} = a \left( \frac{n\pi}{r} \right)^2 = \frac{\lambda}{\rho C} \left( \frac{n\pi}{r} \right)^2 \quad (2-11)$$

$$B_y = \frac{q_1}{\rho C r} \quad (2-12)$$

Compte tenu de la condition initiale  $T_n(t=0) = 0$ , la solution de l'équation (2-9) s'écrit [4]:

$$T_0(t) = \frac{2r q_0 + q_1}{2r\rho C} t \quad (2-13)$$

Et l'équation (2-10) admet comme solution [4] :

$$\mathbf{T}_n(\mathbf{t}) = \frac{\mathbf{B}_y}{\mathbf{A}_{ny}} \left( \mathbf{1} - \mathbf{e}^{-\mathbf{A}_{ny}\mathbf{t}} \right) \quad (2-14)$$

La loi de distribution spatio-temporelle de la température au sein du polymère conducteur composite dans la direction  $y$  du courant électrique, s'écrit [4] :

$$\mathbf{T}(\mathbf{y}, \mathbf{t}) = \mathbf{T}_a + \mathbf{v}_y \mathbf{t} + \frac{\mathbf{q}_1 \mathbf{r}}{\lambda \pi^2} \mathbf{f}_n(\mathbf{t}) \quad (2-15)$$

Avec  $f_n(t)$  est donnée par [4] :

$$\mathbf{f}_n(\mathbf{t}) = \sum_{n=1}^{\infty} \left( \frac{1}{n^2} \right) \left( \mathbf{1} - \mathbf{e}^{-\left( n^2 \frac{\pi^2}{2} \right) \left( \frac{\mathbf{t}}{\tau_y} \right)} \right) \mathbf{cos} \frac{n\pi y}{r} \quad (2-16)$$

La vitesse moyenne de l'échauffement  $V_y$  du matériau composite et le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre thermique  $\tau_y$  dans la direction  $y$  est, respectivement, donnée par les équations suivantes [4] :

$$\mathbf{v}_y = \frac{2 \mathbf{q}_0 \mathbf{r} + \mathbf{q}_1}{2 \mathbf{r}} \quad (2-17)$$

$$\tau_y = \frac{\mathbf{r}^2}{2\mathbf{a}} \quad (2-18)$$

La densité de flux de chaleur résulte par le volume de chaque particule  $q_0$  est considérée comme négligeable devant la quantité  $q_1$  qui résulte au niveau de chaque contact ponctuel particule-particule.

La densité de flux thermique au niveau de contact entre les particules s'exprime en fonction de la densité du courant électrique  $j$  et de la tension électrique de contact entre les particules  $U_c$  [4] :

$$\mathbf{q}_1 = \mathbf{U}_c \mathbf{j} \quad (2-19)$$

L'analogie électrique du système étudié (figure 3), nous a permis d'exprimer La tension  $U_c$  aux bornes du système en fonction des tensions au niveau de chaque contact ponctuelle est donnée par :

$$U = \sum_{i \geq 1} U_c = I \sum_{i \geq 1} R_{ci} \quad (2-20)$$

$R_{ci}$ , représente la résistance électrique,  $U_c$  c'est la tension de contact particule-particule. Dans notre modèle, selon les dimensions adoptées et compte tenu de la forme de la particule retenue, nous avons [4] :

$$U = n U_c \quad (2-21)$$

Où  $n$  est le nombre de particules conductrices dans le matériau composite.

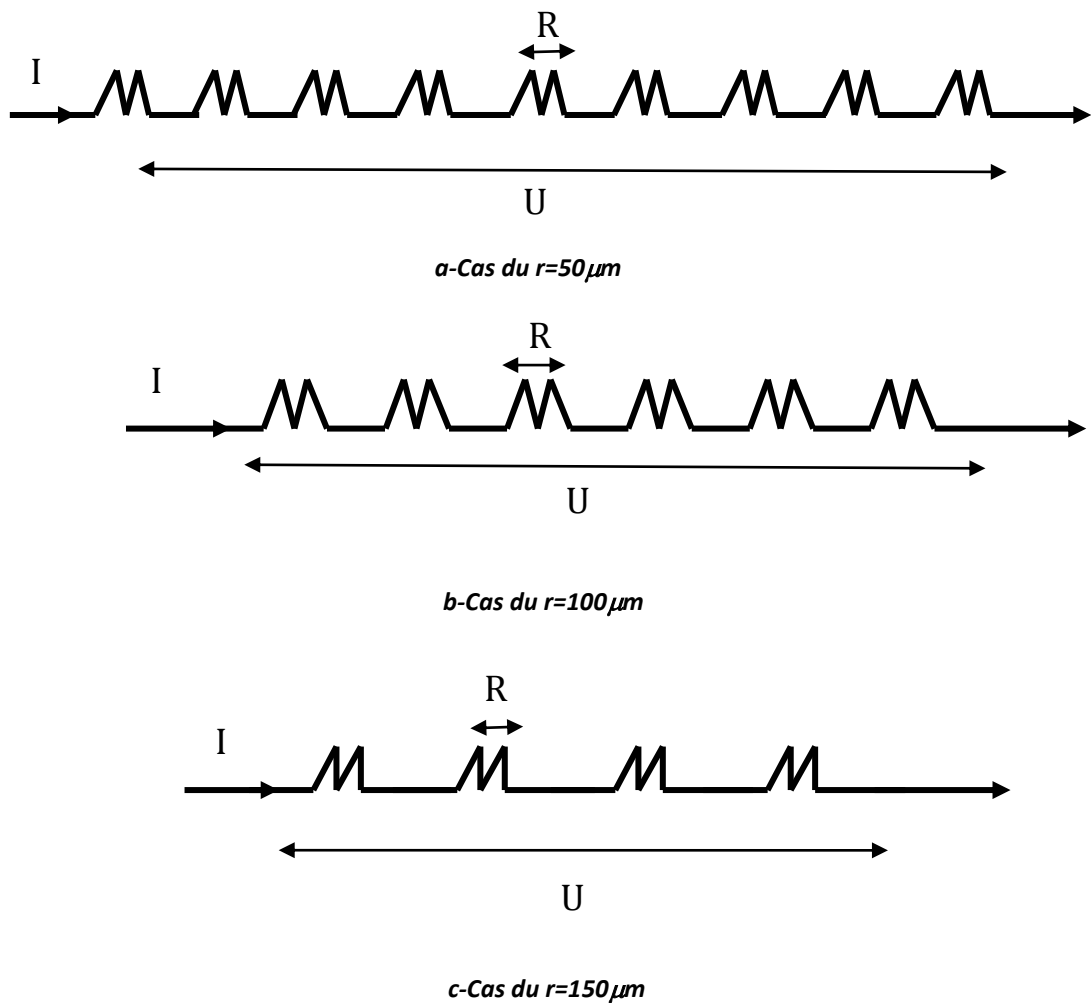


Figure 3 : Analogie électrique

Dans les tableaux 1 et 2, nous consignons respectivement certaines caractéristiques thermophysiques de matériau composite HDPE/NC et de leur constituants HDPE et NC et les valeurs calculées de la vitesse d'échauffement et du temps d'équilibre thermique entre la surface de contact et le volume de chaque particule conductrice.

Matériau	C (J /Kg K)	$\rho$ (Kg / m <sup>3</sup> )	$\lambda$ (W / m K)
HDPE	1.916 10 <sup>3</sup>	0.960 10 <sup>3</sup>	0.485
CN	0.710 10 <sup>3</sup>	1.950 10 <sup>3</sup>	1.7
(HDPE / NC)	1.8137 10 <sup>3</sup>	1.0132 10 <sup>3</sup>	0.529

**Tableau 1 : caractéristiques thermophysiques des matériaux utilisés**

Rayons des sphères	$v_y$ (k/s)	$\tau_y$ 10 <sup>3</sup> (s)
r=50	20	4.33
r=100	10	17.3
r=150	6.66	39

**Tableau 2 : vitesse moyenne d'échauffement et temps d'équilibre thermique dans la direction y.**

## 2.2. Temps nécessaire au basculement

Lorsque un matériau composite de type polymère conducteur est soumis à une tension U, une quantité d'énergie électrique est convertie en énergie thermique par effet Joule, de ce fait, la matrice de polymère subit une dilatation thermique qui s'accompagne à une transition de phase de l'état cristallin à l'état amorphe [1].

Ce phénomène engendre une rupture de chemin conducteur, et aucun courant électrique ne traverse le composite. Le temps nécessaire pour chauffer le matériau composite par un courant électrique I de la température ambiante à la température critique  $T_c$ ; température de basculement de l'état conducteur à l'état isolant, est tel que :

$$RI^2(t)\Delta t \geq mC\Delta T \quad (2-22)$$

A l'instant  $t_b$  qui représente le temps nécessaire au matériau composite pour basculer de l'état conducteur à l'état isolant, toute l'énergie électrique se transforme en énergie thermique [4], et nous pouvons écrire :

$$RI^2(t)t_b = mC(T_c - T_a) \quad (2-23)$$

Le temps de basculement de l'état conducteur à l'état isolant s'exprime par l'expression [4] :

$$t_b = \frac{RmC(T_c - T_a)}{U^2} = \frac{mC(T_c - T_a)}{IU} \quad (2-24)$$

La vitesse d'échauffement qui représente la variation de la température par rapport au temps reste constante, l'échauffement est uniforme [4], cette vitesse est calculée par la relation suivante :

$$V = \frac{dT}{dt} \quad (2-25a)$$

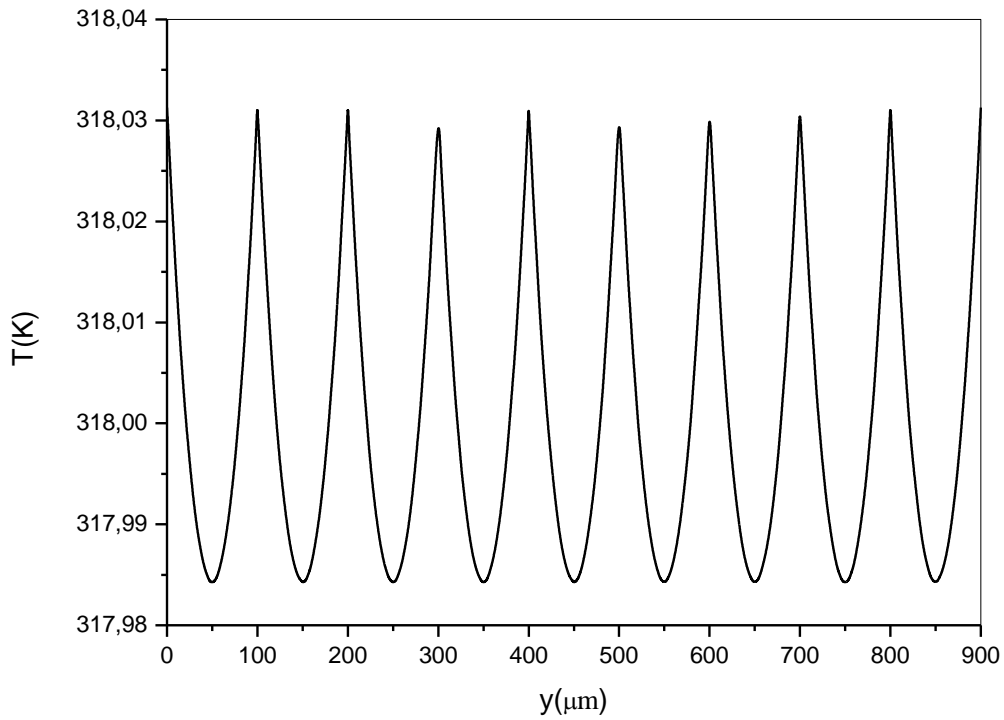
L'intégration de cette dernière donne l'expression du temps de basculement [4] :

$$t_b = \frac{T_c - T_a}{V_y} \quad (2-25b)$$

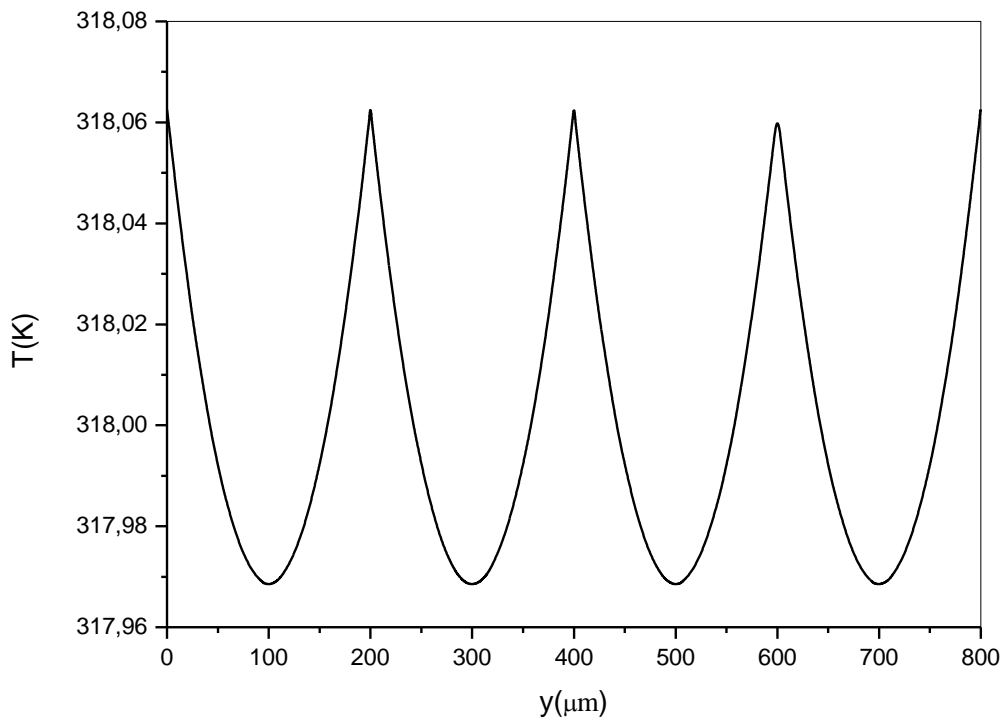
Les différentes valeurs du temps  $t_b$  nécessaire au basculement de l'état conducteur à l'état isolant sont consignées dans le tableau suivant:

Les rayons des sphères de renfort( $\mu\text{m}$ )	Temps de basculement(s)
r=50	1
r=100	2
r=150	3

**Tableau 3 : Temps de basculement état conducteur-état isolant**

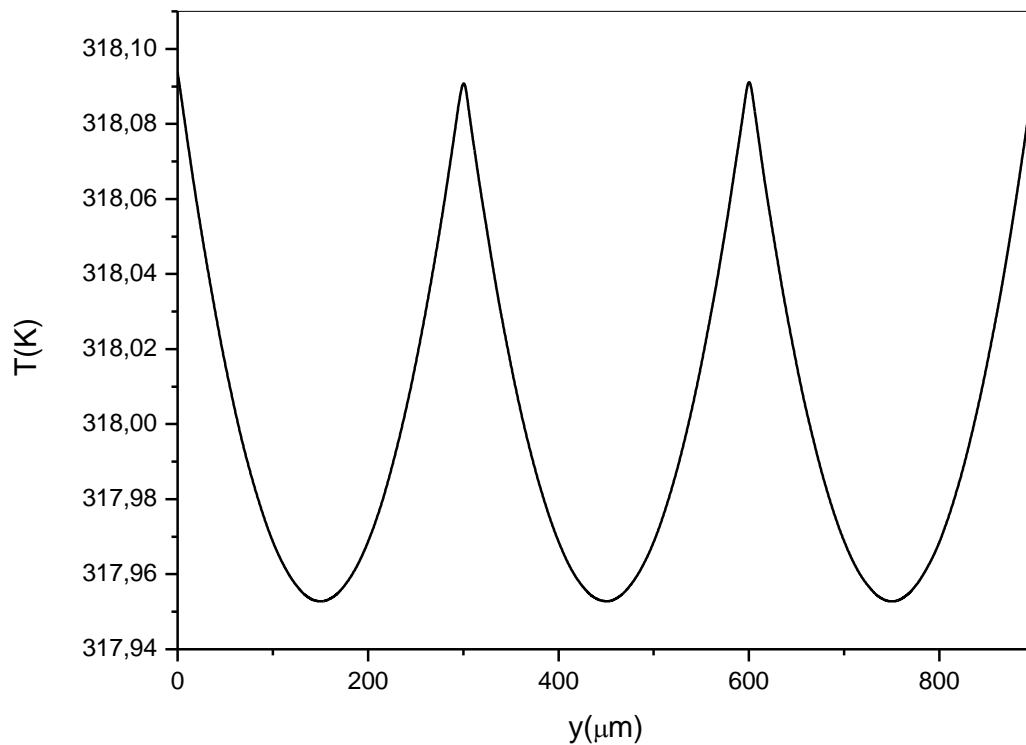


**Figure 4 : Distribution de la température dans le matériau composite (HDPE/NC) suivant la direction y pour  $j=10^2 A/m^2$ ,  $t= t_b=1 s$  et  $r = 50 \mu m$**



**Figure 5: Distribution de la température dans le matériau composite (HDPE/NC) suivant la direction y Pour  $j=10^2 A/m^2$ ,  $t= t_b=2 s$  et  $r = 100 \mu m$**





**Figure 6 : Distribution de la température dans le matériau composite (HDPE/NC) suivant la direction  $y$   
Pour  $j=10^2 \text{ A/m}^2$ ,  $t= t_b=3 \text{ s}$  et  $r = 150 \mu\text{m}$**

Les figures 4, 5 et 6 représentent, les distributions de la température au sein du matériau composite HDPE/NC suivant la direction  $y$  du courant électrique. Ce matériau composite de type polymère conducteur est constitué d'une matrice en polyéthylène haute densité dans laquelle sont noyées des inclusions conductrices en noir de carbone de forme sphérique et de dimensions respectives  $r=50 \mu\text{m}$ ,  $100 \mu\text{m}$  et  $150 \mu\text{m}$ . cette étude est réalisée pour une durée qui correspond au temps nécessaire au basculement de l'état conducteur à l'état isolant et pour une densité du courant électrique constante et égale à  $j=10^2 \text{ A/m}^2$ . Sur ces figures, nous remarquons que les distributions de la température varient d'une manière similaire et périodique de période  $50 \mu\text{m}$  dans le cas des particules sphériques de rayon  $50 \mu\text{m}$ ,  $100 \mu\text{m}$  dans le cas des particules sphériques de rayon  $100 \mu\text{m}$  et  $150 \mu\text{m}$  dans le cas des particules sphériques de rayon  $150 \mu\text{m}$ . les différents résultats que nous avons obtenus montrent que le temps nécessaire à la transition de l'état conducteur à l'état isolant est proportionnel à la taille des particules de renfort. Au temps de basculement, l'effet de la résistivité à coefficient de température positif (CTP) se présente ; la résistivité électrique du matériau composite augmente brusquement et le matériau passe de l'état conducteur à l'état isolant. A cette température critique (température de transition électrique) la chaîne des particules de noir de carbone présente dans la

matrice de polymère est servie de chemin conducteur au courant électrique est rompue et le polymère conducteur composite passe de l'état conducteur à l'état isolant. Les différents résultats que nous avons obtenus montrent que les particules conductrices des petites tailles permettent une augmentation plus rapide de la résistivité électrique de polymère conducteur composite se qui donne une meilleure limitation du courant électrique.

### 2.3. Distribution de température dans la direction X

Dans cette partie, nous étudions la distribution de la température au sein du matériau composite dans la direction  $x$  qui est perpendiculaire à la direction du courant électrique  $I$ . A cet effet, nous assimilons les chaînes des inclusions conductrices à des plaques rectangulaires de largeur  $2r$ , équidistantes [4] (figure 7).

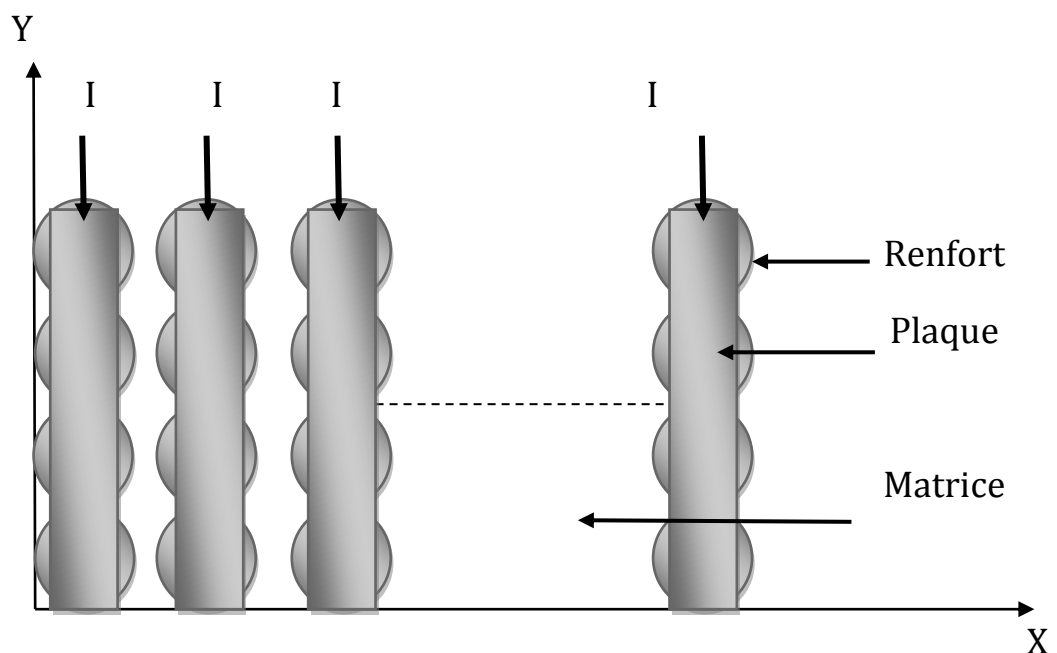


Figure 7: chaînes conductrice assimilées à des plaques de largeur  $2r$  [4]

L'équation du transfert de chaleur par conduction thermique au sein du polymère conducteur composite, dans la direction  $x$  s'écrit :

$$Q(x) = \rho C \frac{\partial^2 T(x,t)}{\partial x^2} - \lambda \frac{\partial^2 T(x,t)}{\partial x^2} \quad (2-26)$$

Avec  $Q(x)$  est la quantité de chaleur dégagée localement suivant la direction  $x$  par l'effet Joule. D'après le modèle de Strümpfer, cette quantité s'exprime par [1]:

$$Q(x) = \frac{\bar{q}}{\pi} \left( 1 + 2 \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \frac{1}{(2n+1)} \cos \left( (2n+1) \frac{\pi x}{r} \right) \right) \quad (2-27)$$

Où  $\bar{q}$ , la densité moyenne du flux de chaleur dissipée au niveau des plaques rectangulaires.

La distribution spatio-temporelle de la température dans le polymère conducteur composite suivant la direction  $x$  peut être exprimée par une série de Fourier comme suit [1]:

$$T(x, t) = T_a + \sum_{n=0}^{\infty} T_a(t) \cos \left( n\pi \frac{x}{r} \right) \quad (2-28)$$

On remplaçant  $Q(x)$  et  $T(x,y)$  par leurs expressions dans l'équation (2-21), nous trouvons :

$$\frac{\partial T_0}{\partial t} = \frac{\bar{q}}{2C\rho} \quad (2-29)$$

Et

$$\frac{\partial T_n}{\partial t} + A_{nx} T_n = B_{nx}, \quad n \geq 1 \quad (2-30)$$

Où

$$A_{nx} = \frac{n^2 \pi^2}{2\tau_x} \quad (2-31)$$

$$B_{nx} = \frac{1}{n} \frac{2V_x}{\pi} \sin \left( n \frac{\pi}{2} \right) \quad (2-32)$$

La distribution spatio-temporelle de la température dans le polymère conducteur composite suivant la direction  $x$  est représentée par [1]:

$$T(x, t) = T_a + V_x t + \frac{2\bar{q}r^2}{\lambda\pi^3} \sum_{n \geq 1} \left( \frac{1}{n^3} \right) g_n \quad (2-33)$$

Avec

$$g_n = \left( 1 - e^{-\left(n^2 \frac{\pi^2}{\tau_x}\right)} \right) \cos\left(\frac{n\pi x}{r}\right) \sin\left(n \frac{\pi}{x}\right) \quad (2-34)$$

$\tau_x$  et  $v_x$  sont respectivement le temps d'équilibre thermique entre le volume et la surface de contact et la vitesse d'échauffement dans la direction  $x$ , sont donnés par les relations suivantes [1] :

$$v_x = \frac{\bar{q}}{2\rho C} \quad (2-35)$$

$$\tau_x = \frac{r^2}{2a} \quad (2-36)$$

Avec  $\bar{q}$  est la densité de flux thermique moyenne dissipée par les plaques reliant les points de contact [1], qui est donné par :

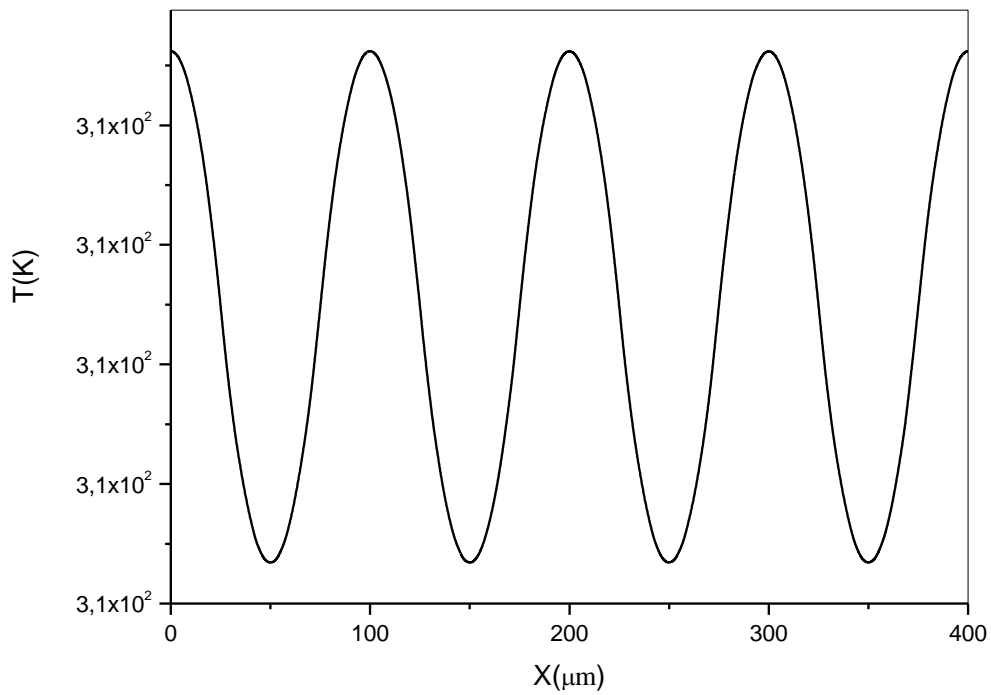
$$\bar{q} = E j \Phi \quad (2-37)$$

Où  $j$  et  $E$  sont respectivement la densité du courant électrique et le champ électrique appliqué au système.

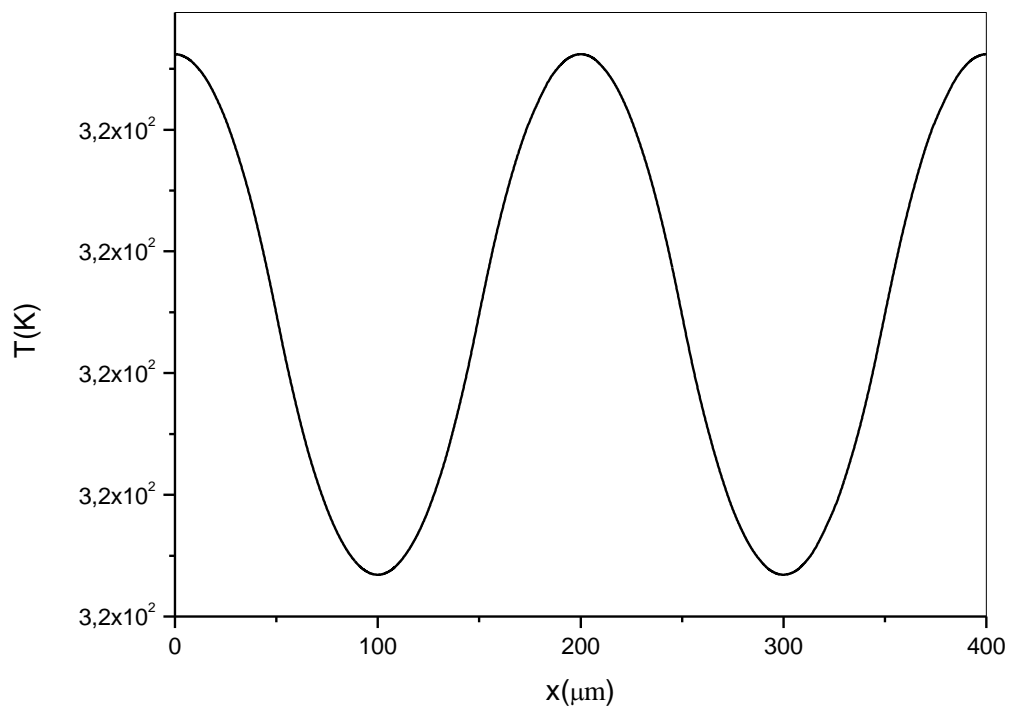
Le tableau 4, regroupe les valeurs calculées de la vitesse d'échauffement et de temps d'équilibre thermique entre le volume et la surface de contact de chaque particule conductrice dans la direction  $x$  perpendiculaire à la direction  $y$  du courant électrique  $I$ .

Le rayon de renfort	$V_x$ (K/s)	$\tau_x$ $10^3$ (s)
r=50	9.86	4.33
r=100	9.86	17.3
r=150	9.86	39

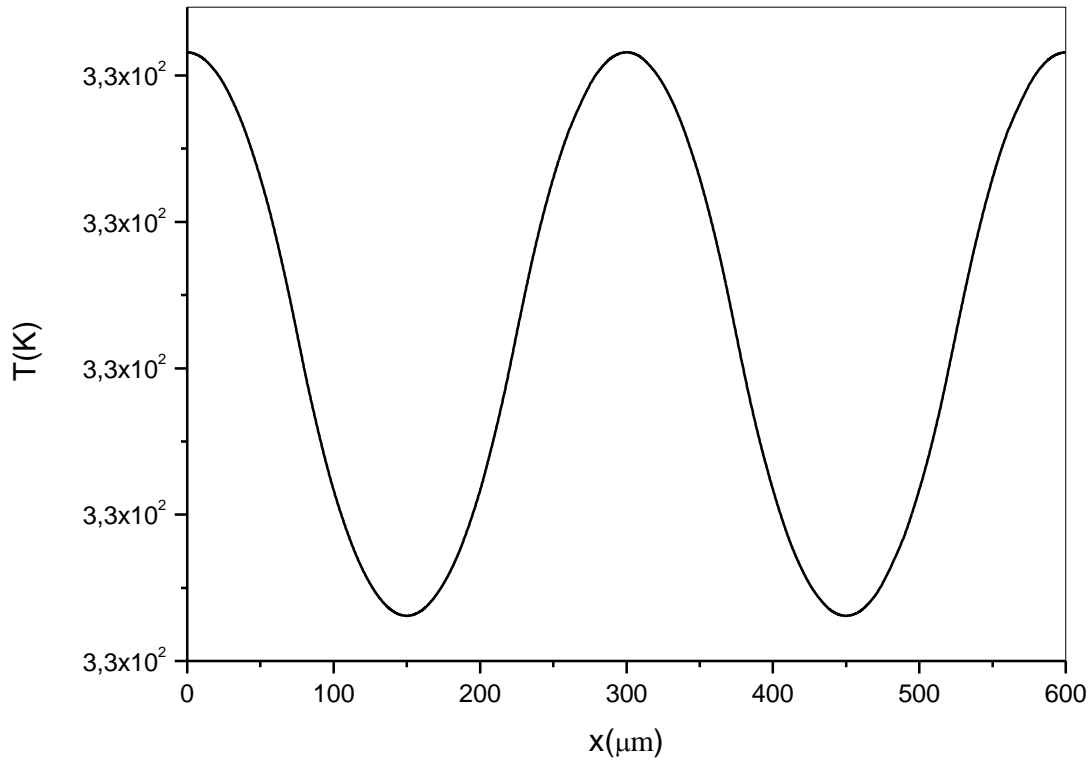
**Tableau 4 : vitesse d'échauffement et temps d'équilibre entre la surface de contact et le volume de chaque particule Conductrice dans la direction  $x$**



**Figure 8 : Distribution de la température dans le matériau composite (HDPE/NC) suivant la direction x  
Pour  $j=10^2 \text{ A/m}^2$ ,  $t = t_b=1 \text{ s}$  et  $r = 50 \text{ } \mu\text{m}$**



**Figure 9 : Distribution de la température dans le matériau composite (HDPE/NC) suivant la direction x  
pour  $j=10^2 \text{ A/m}^2$ ,  $t = t_b=2 \text{ s}$  et  $r = 100 \text{ } \mu\text{m}$**



**Figure 10 : Distribution de la température dans le matériau composite (HDPE/NC) suivant la direction  $x$  pour  $j=10^2 A/m^2$ ,  $t= t_b =3 s$  et  $r = 150 \mu m$**

Les figures 8, 9 et 10, représentent les variations de la température dans le matériau composite HDPE/NC suivant la direction  $x$  perpendiculaire à la direction du courant électrique. Sur ces figures nous remarquons que les distributions de la température sont toujours périodiques. Nous constatons, aussi, que la propagation de la chaleur suivant la direction  $x$  est relativement faible par rapport à la propagation de la chaleur suivant  $y$ . Ceci est dû à la faible conductivité thermique de la matrice du polymère. Les différents résultats que nous avons obtenus montrent que le temps d'équilibre thermique est proportionnel à la taille des particules conductrices.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. R. Strumpler, G. Maidorn, J. Rhyner, fast current limitation by conducting polymer composites, *Journal of Appl. Phys*, 81 (10), 15 May (1997) 6786 – 6794.
2. Y. Agari, A. Ueda, M. Tanaka, and S. Nagai, Thermal conductivity of a polymer filled with particles in the wide range from low to super- high volume content, *Journal of Appl Ploy Science*, Vol. 40, 929 - 941, 1990.
3. Jean Marie Berthelot, *Matériaux composites, comportement mécanique et analyse des structures*, Ed. Masson, Paris, 1996.
4. Hamouni Mohammed, contribution à l'étude de la conductivité électrique des polymères conducteurs, cas du polymère conducteur composite polyéthylène/diborure de titane (PE/TiB<sub>2</sub>), thèse de doctorat, Université de Tlemcen, février 2005.

## **CHAPITRE 3**

# **EFFET DE LA MATRICE SUR LE PHENOMENE DE TRANSITION ETAT CONDUCTEUR- ETAT ISOLANT D'UN POLYMERE CONDUCTEUR COMPOSITE**

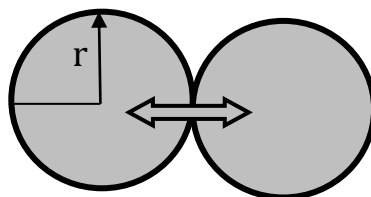


## Introduction

Dans le présent chapitre qui constitue une extension à la partie réalisée au chapitre précédent, nous utilisons le même formalisme mathématique pour mettre en évidence l'effet de la matrice de polymère sur le phénomène de transition de l'état de faible résistivité électrique à celui de résistivité électrique importante. A cet effet, nous considérons comme matériau de renfort des particules de noir de carbone (NC) de forme sphérique et de rayon  $r=50\mu\text{m}$ . ces particules sont noyées respectivement dans des matrices en polytéréphtalate d'éthylène PET, polypropylène PP, polyéthylène haute densité HDPE et polyéthylène basse densité LDPE.

### 1. Description du Phénomène

A l'état conducteur, les particules conductrices sont assez proches les unes par rapport aux autres pour former des chemins conducteurs (phénomène de percolation) et permettre au courant électrique de traverser le dispositif (le matériau composite). En cas d'une sur-intensité, un courant électrique important traverse le matériau et à cause de la dissipation de la chaleur par effet Joule, il se produit une augmentation de la température du composite. Cette augmentation de la température provoque une expansion (dilatation thermique) de la matrice du polymère. Les particules conductrices se déplacent d'une façon indépendante les unes par rapport aux autres et il y a une rupture des chemins conducteurs, la résistance électrique augmente brusquement et aucun courant électrique ne passe. Inversement, la disparition de la sur-intensité permettra à la matrice de polymère de retrouver son état initial, la résistance électrique diminue et le courant électrique est rétabli [1].



*Figure 1 : contact particule – particule dans la direction y du courant électrique [2]*

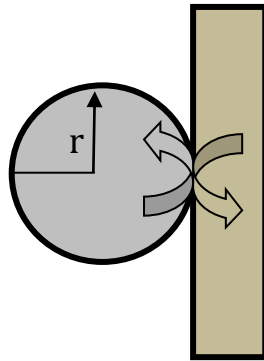
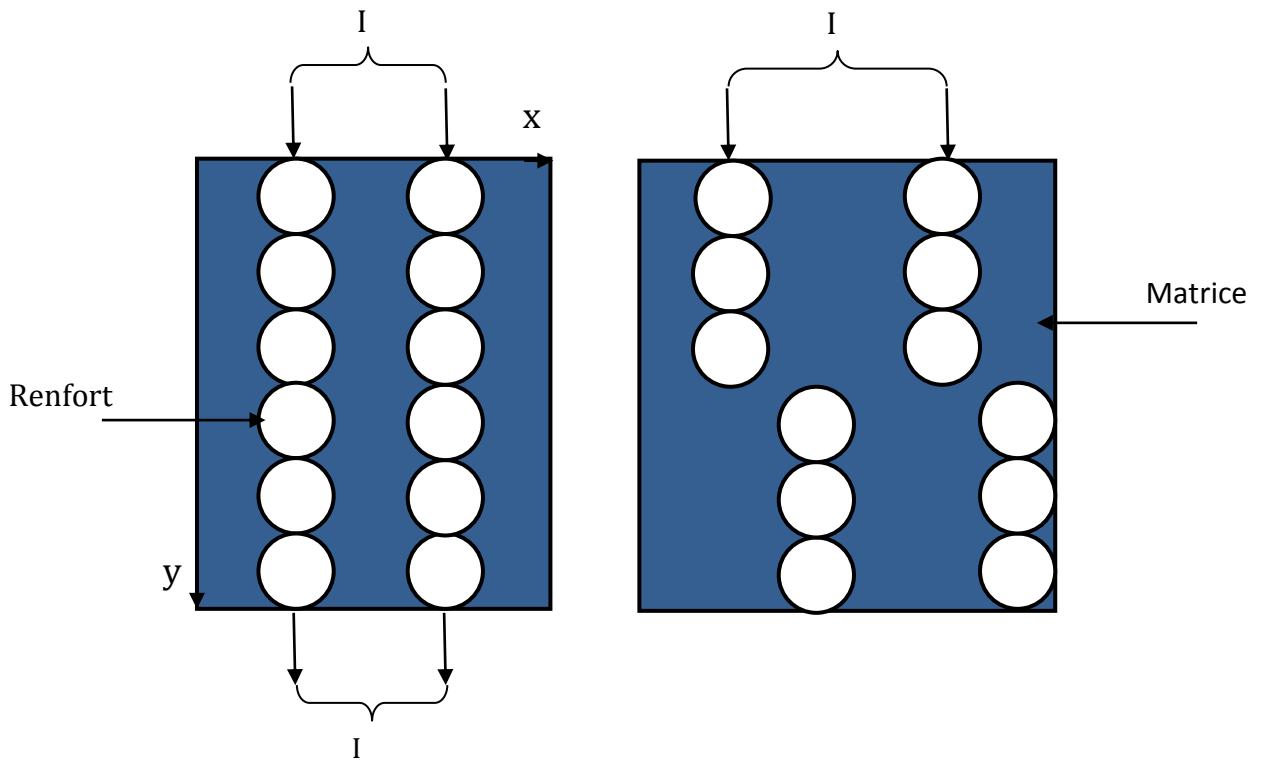


Figure2: contact particule - matrice dans la direction  $x$  perpendiculaire au courant électrique [2]



(a):Etat conducteur, pour  $T < T_c$

(b) : Etat isolant, pour  $T > T_c$

Figure 3 : Transition état conducteur - état isolant [2]

Dans le tableau 1, nous consignons certains caractéristiques thermophysiques des matériaux composites (PET/NC), (LDPE/NC), (PP/NC) et (PEHD/NC), et de leurs constituants polytéréphtalate d'éthylène PET, polyéthylène basse densité LDPE, polypropylène PP, polyéthylène haute densité PEHD, et noir de carbone NC.

Matériaux	C (J /Kg K)	$\rho$ (Kg / m <sup>3</sup> )	$\lambda$ (W / m K)
NC	0.710 .10 <sup>3</sup>	1.950 .10 <sup>3</sup>	1.7
PET	1.275 .10 <sup>3</sup>	1.6 .10 <sup>3</sup>	0.275
PP	1.800 .10 <sup>3</sup>	0.9 .10 <sup>3</sup>	0.16
HDPE	1.916 10 <sup>3</sup>	0.960 10 <sup>3</sup>	0.485
LDPE	1.916 .10 <sup>3</sup>	0.916 .10 <sup>3</sup>	0.34
(PET/NC)	1.234 .10 <sup>3</sup>	0.1428 .10 <sup>3</sup>	0.314
(LDPE/NC)	1.8285 .10 <sup>3</sup>	0.9909 .10 <sup>3</sup>	0.384
(PP/NC)	1.7209 .10 <sup>3</sup>	0.9761 .10 <sup>3</sup>	0.188
(HDPE / NC)	1.8137 .10 <sup>3</sup>	1.0132 .10 <sup>3</sup>	0.529

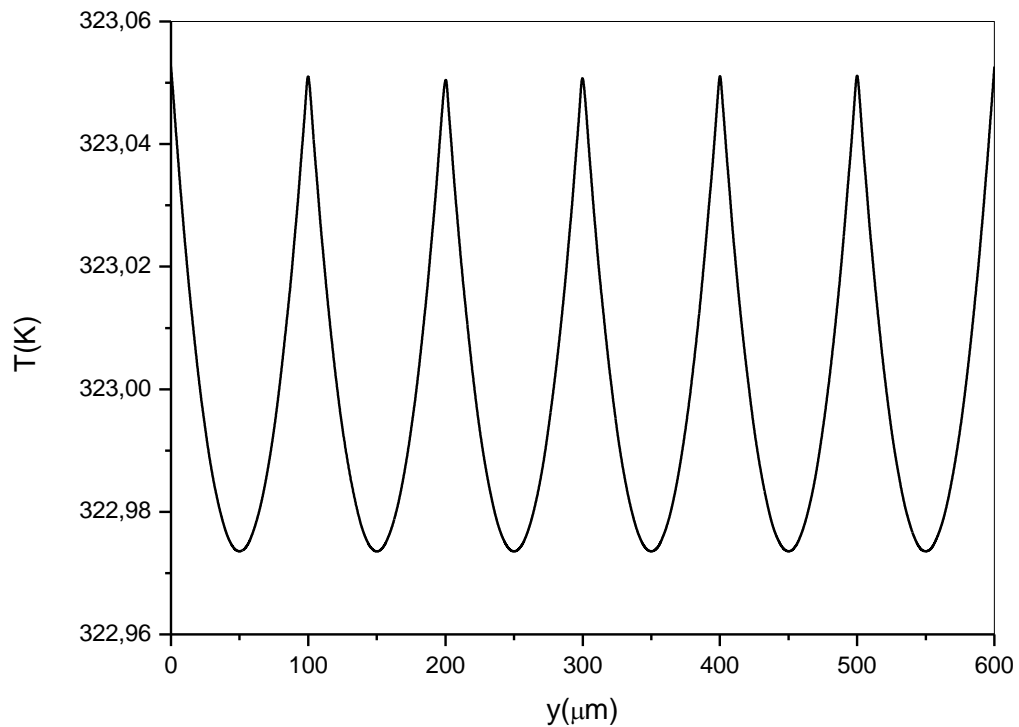
**Tableau 1 : caractéristiques des matériaux composites et des leurs constituants**

## 2. Transfert de chaleur dans la direction y

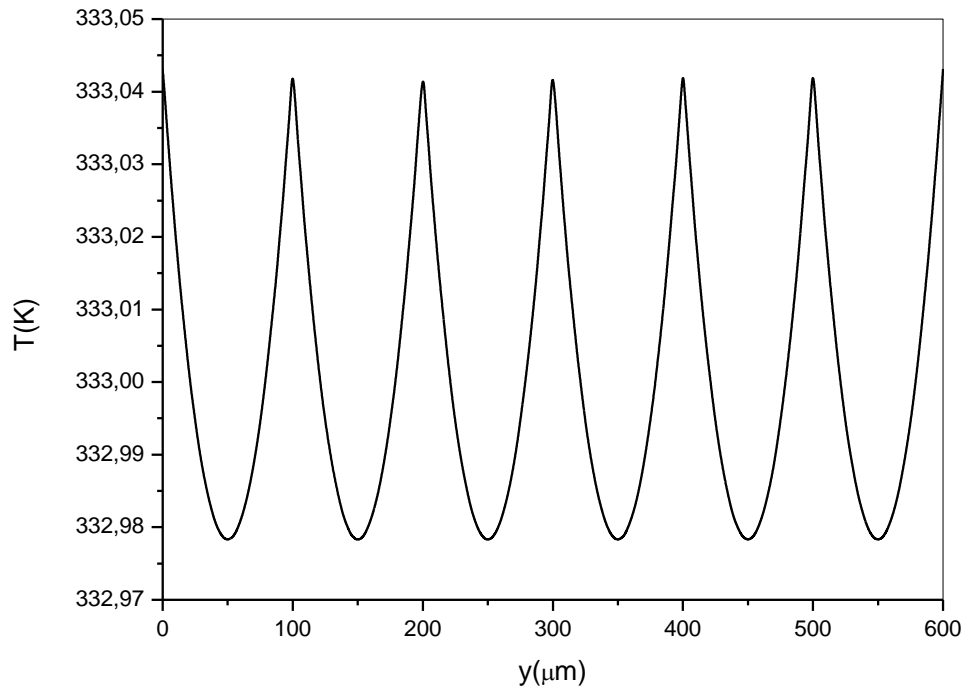
Les valeurs calculées des vitesses d'échauffement et du temps d'équilibre thermique entre la surface de contact et le volume de chaque polymère conducteur composite sont regroupés dans le tableau 2.

Matériau composite	$v_y$ (k/s)	$v_x$ (k/s)	$\tau$ ( $10^3$ s)	$T_b$ (s)
PET/NC	20	102.8	0.7	1.25
LDPE/NC	20	10	5.89	1.75
PP/NC	20	10.78	11.16	1.5
HDPE / NC	20	9.86	4	1

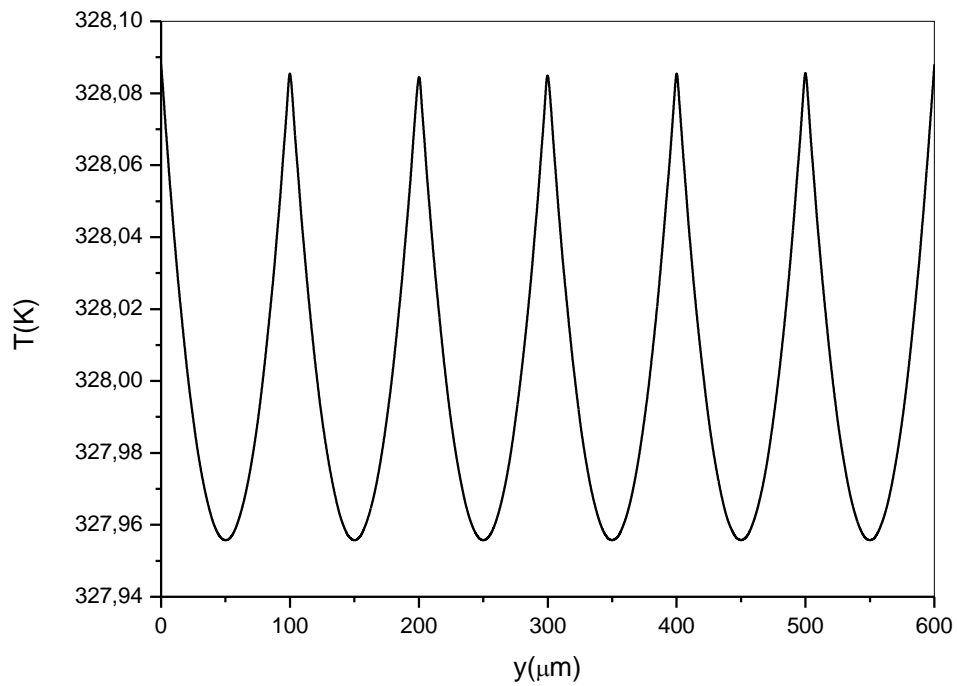
**Tableau.2 : vitesses moyennes d'échauffements dans les directions  $y$  et  $x$ , temps d'équilibre thermique et temps de basculement de l'état conducteur à l'état isolant.**



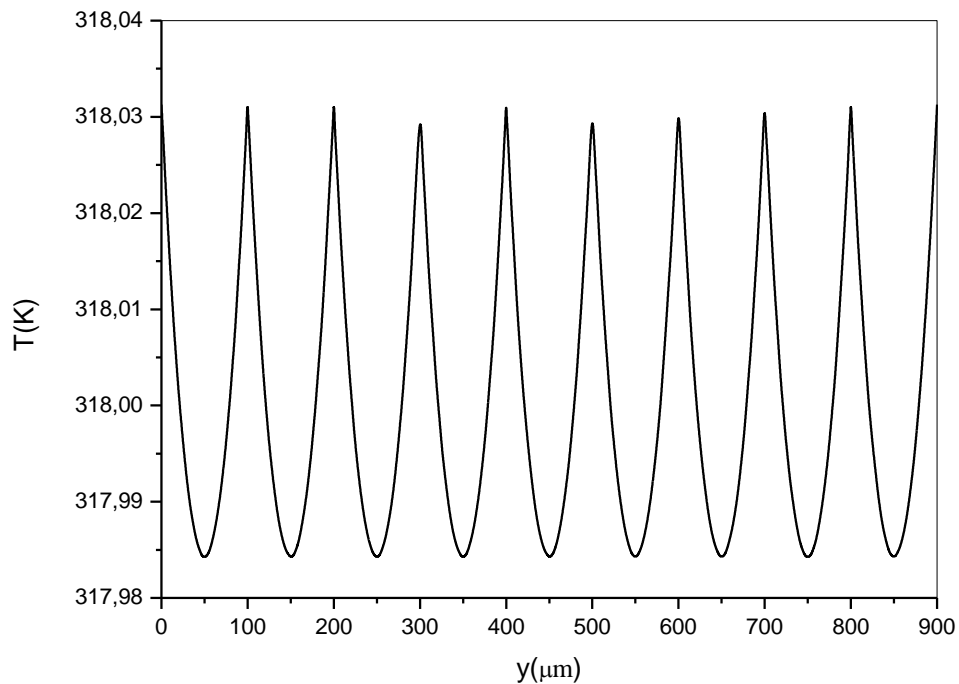
**Figure 4 : Distribution de la température dans le matériau composite (PET/NC) suivant la direction  $y$  pour  $j=10^2 \text{ A/m}^2$ ,  $t = t_b=1.25 \text{ s}$  et  $r = 50 \mu\text{m}$**



**Figure 5 : Distribution de la température dans le matériau composite (LDPE/NC) suivant la direction y pour  $j=10^2\text{A/m}^2$ ,  $t= t_b =1.75\text{ s}$  et  $r = 50\ \mu\text{m}$**



**Figure 6 : Distribution de la température dans le matériau composite (PP/NC) suivant la direction y Pour  $j=10^2\text{A/m}^2$ ,  $t= t_b =1.5\text{ s}$  et  $r = 50\ \mu\text{m}$**



**Figure 7 : Distribution de la température dans le matériau composite (HDPE/NC) suivant la direction y  
Pour  $j=10^2 \text{ A/m}^2$ ,  $t= t_b =1 \text{ s}$  et  $r = 50 \text{ }\mu\text{m}$**

Les figures 4, 5, 6 et 7 représentent les variations de la température dans les matériaux composites de type polymères conducteurs. Ces matériaux sont constitués des particules en noir de carbone de forme sphérique et de dimension  $r=50\mu\text{m}$  noyées, respectivement, dans des matrices en PET, en LDPE, en PP et en HDPE et ceci pour une durée correspond au temps nécessaire au basculement de l'état conducteur à l'état isolant pour chaque matériau étudié et pour une densité de courant électrique  $j=10^2 \text{ A/m}^2$ . Sur ces figures, nous remarquons que les distributions de la température varient de la même manière. Les différents résultats que nous avons obtenus et représentés sur les figures 4, 5, 6 et 7 montrent que le temps nécessaire pour que le matériau composite bascule de l'état conducteur à l'état isolant est plus faible dans le cas de polymère conducteur composite (HDPE/NC) ( $t_b=1\text{s}$ ) par rapport aux autres cas,  $t_b=1.25\text{s}$  dans le cas de (PET/NC),  $t_b=1.5\text{s}$  dans le cas de (PP/NC) et  $t_b=1.75\text{s}$  dans le cas de (LDPE/NC).

Puisque à l'instant  $t=t_b$  l'effet de CTP se présente, la résistance électrique augmente brusquement et le polymère conducteur composite passe de l'état conducteur à l'état isolant. Nous avons constaté que la matrice de polymère en polyéthylène à haute densité permet une augmentation plus rapide de la résistance électrique de polymère conducteur composite par effet de CTP se qui provoque une meilleur limitation du courant électrique.

### 3. Transfert de chaleur dans la direction x

Les figures 8, 9, 10 et 11 représentent les distributions des températures au sein des polymères conducteur examinés suivant la direction x perpendiculaire à la direction y du courant électrique. Sur ces figures nous remarquons que les variations de la température sont toujours périodiques. Les différents résultats que nous avons obtenus, montrent que la diffusion de la chaleur suivant la direction x et relativement faible par apport à celle dans la direction y. ceci et de à la faible conductivité électrique de la matrice de polymère.

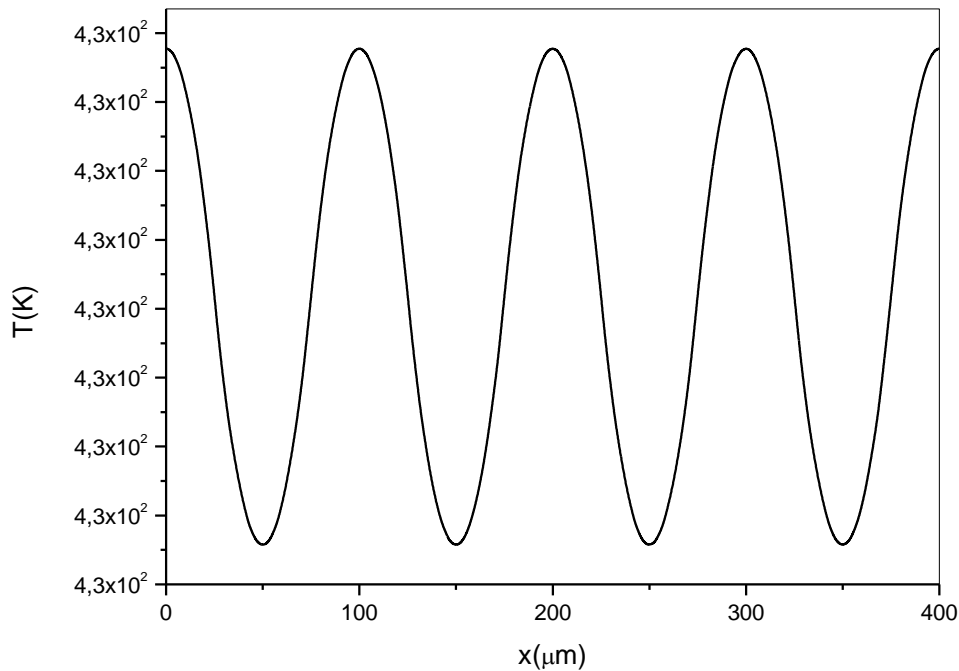


Figure 8 : Distribution de la température dans le matériau composite (PET/NC) suivant la direction x  
Pour  $j=10^2 A/m^2$ ,  $t= t_b =1.25 s$  et  $r = 50 \mu m$

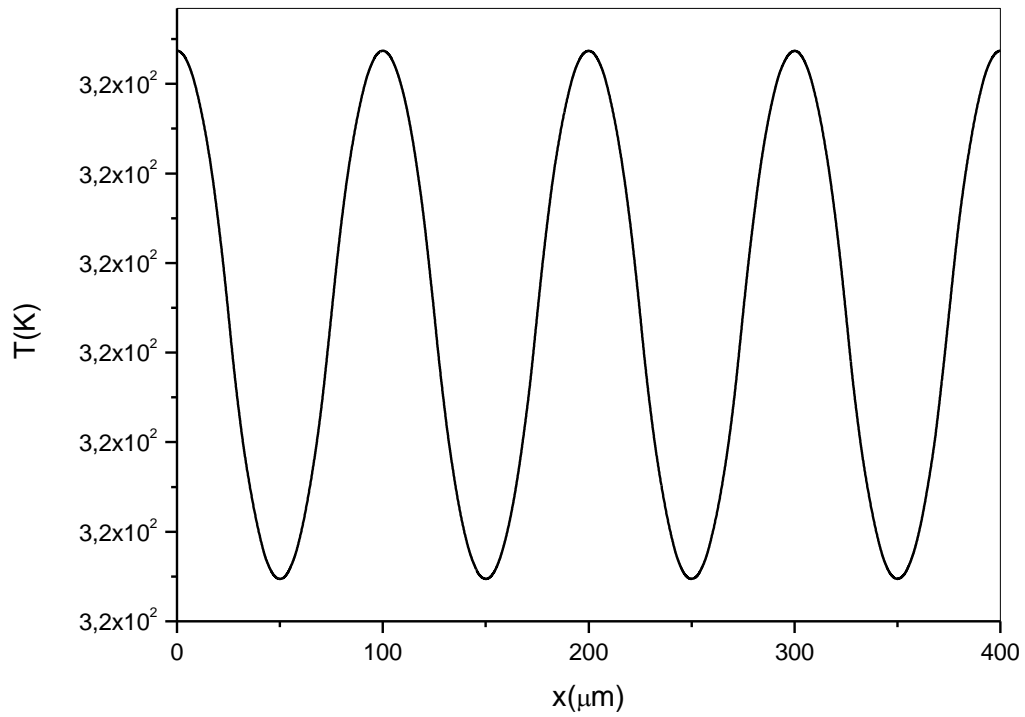


Figure 9 : Distribution de la température dans le matériau composite (LDPE/NC) suivant la direction x pour  $j=10^2\text{A/m}^2$ ,  $t= t_b =1.75\text{ s}$  et  $r = 50\ \mu\text{m}$

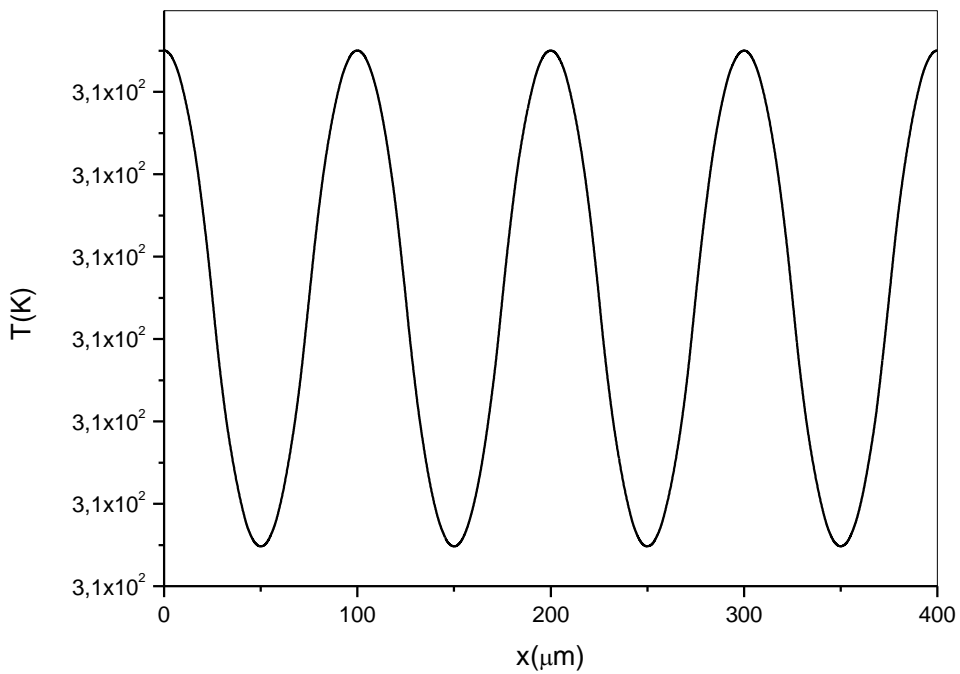
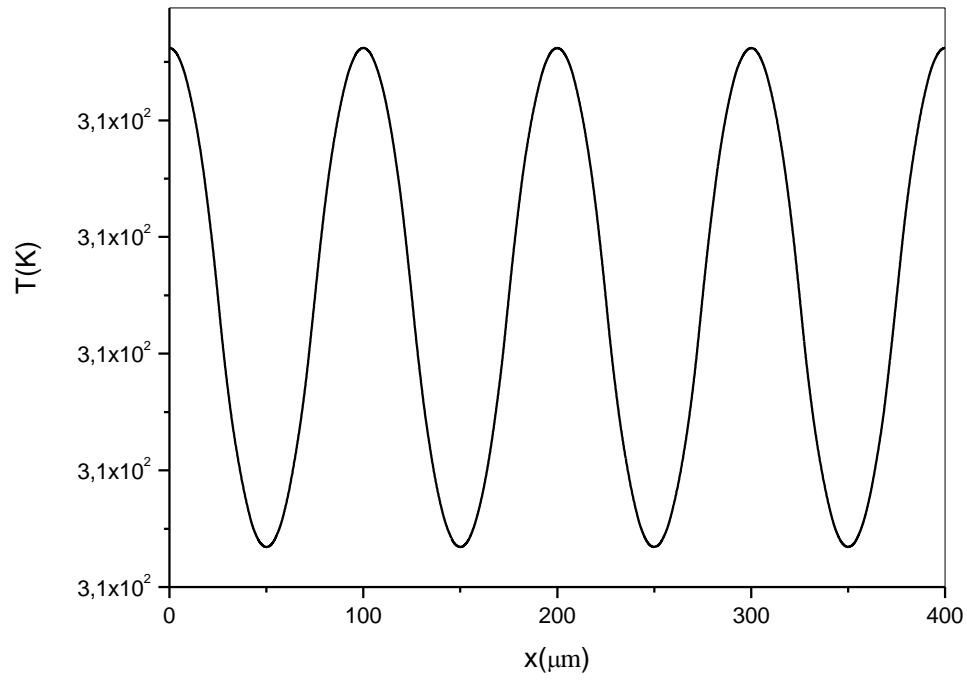


Figure 10 : Distribution de la température dans le matériau composite (PP/NC) suivant la direction x pour  $j=10^2\text{A/m}^2$ ,  $t= t_b =1.5\text{ s}$  et  $r = 50\ \mu\text{m}$





**Figure 11: Distribution de la température dans le matériau composite (HDPE/NC) suivant la direction  $x$  Pour  $j=10^2 A/m^2$ ,  $t= t_b =1 s$  et  $r = 50 \mu m$**

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. Hamouni mohammed, étude théorique du polymère conducteur, cours master 2 physique des polymères, 2020.
2. Hamouni mohammed, contribution à l'étude de la conductivité électrique des polymères conducteurs, cas du polymère conducteur composite polyéthylène/diborure de titane (PE/TiB<sub>2</sub>), thèse de doctorat, Université de Tlemcen, février 2005.

## **CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES**

## *Conclusions*

Le travail présenté dans ce mémoire s'est focalisé sur les effets de la taille des particules conductrices et de la nature de la matrice de polymère sur le comportement thermique et le temps de réponse d'un fusible CTP à base de matériau composite de type polymère conducteur.

Le travail réalisé au chapitre 2 a pour but d'examiner l'effet de la taille des particules conductrices sur le comportement thermique et le temps de réponse d'un polymère conducteur composite. Cette étude est consacrée au cas d'un matériau composite constitué d'une matrice en polyéthylène haute densité dans laquelle sont noyée séparément des inclusions conductrices en noir de carbone et de dimension, respective, 50 $\mu\text{m}$ , 100 $\mu\text{m}$  et 150 $\mu\text{m}$ . Les différents résultats obtenus dans cette partie de travail mettent en évidence l'influence de la taille des particules conductrices sur les distributions spatio-temporelles de la température  $T(x,t)$  et  $T(y,t)$  au sein de ce polymère conducteur composite, sur le temps nécessaire au basculement de l'état conducteur à l'état isolant, sur la vitesse d'échauffement dans la direction  $y$  du courant électrique et  $x$  qui lui est perpendiculaire et le temps d'équilibre thermique.

Nous montrons que l'utilisation des particules conductrices en noir de carbone de forme sphérique et de rayon  $r=50\mu\text{m}$  permet à la matrice du polymère en polyéthylène haute densité d'atteindre rapidement sa température critique pour basculer de l'état conducteur à l'état isolant. A cette température, le chemin conducteur présent dans la matrice de polymère au seuil de percolation est rompu et le polymère conducteur composite passe de l'état conducteur à l'état isolant. Nous avons constaté que les particules conductrices de dimension  $r=50\mu\text{m}$  permettent une augmentation plus rapide de la résistivité électrique de polymère conducteur composite par effet de CTP ce qui provoque une meilleure limitation du courant électrique. En effet, dans le cas des particules de rayon  $r=50\mu\text{m}$ , la transition de l'état conducteur à l'état isolant est amorcée après 1s, alors qu'elle a lieu au bout de 2s dans le cas des particules de rayon  $r=100\mu\text{m}$  et 3s dans le cas des particules de rayon  $r=150\mu\text{m}$ .

Le travail réalisé dans le chapitre 3, a pour objet d'examiner l'effet de la matrice de polymère sur le comportement thermique et le temps de réponse d'un polymère conducteur composite. Cette partie est réservée aux particules en noir de carbone de rayon  $r=50\mu\text{m}$  dispersés respectivement dans des matrices en polytéréphtalate d'éthylène PET, polyéthylène basse densité LDPE, polypropylène PP, polyéthylène haute densité PEHD.

Les résultats obtenus dans ce chapitre, montrent que cette transition se produit 1.25s après l'apparition de la surintensité dans le cas du composite (PET/NC), 1.75s dans le cas de (LDPE/NC), 1.5s dans le cas de (PP/NC) et 1s dans le cas de (HDPE/NC).

## Perspectives

Les différents résultats que nous avons obtenus dans ce mémoire de mastère, nous suggèrent de consacrer à la venir notre activité de recherche scientifique à l'étude de l'effet de seuil de percolation sur le comportement thermique et le temps de transition état conducteur - état isolant dans des matériaux composites de type (polymère/polymère conducteur). Il faut souligner que ce domaine de recherche est très prometteur et on peut donc envisager une grande marge d'amélioration des propriétés thermophysiques pour réduire le temps de basculement et la vitesse d'échauffement.

## ملخص

الهدف من هذا العمل هو المساهمة في دراسة تأثير بعض العوامل في السلوك الحراري لمنصهرة ذات معامل ايجابي لدرجة الحرارة مصنوعة من اللدائن المركبة الناقلة. حيث نركز بصفة خاصة على تأثير حجم الجسيمات الناقلة و كذلك طبيعة مادة اللدائن على الزمن اللازم للانتقال من الحالة الناقلة إلى الحالة العازلة، سرعة التسخين وكذلك زمن التوازن الحراري.

كمرحلة أولى قمنا بدراسة المادة (HDPE/NC) مع تغيير حجم الجسيمات الناقلة.

في المرحلة الثانية قمنا بتثبيت حجم المواد الناقلة و تغيير طبيعة مادة اللدائن، وفي كل مرحلة نقوم بحساب الزمن اللازم للانتقال من الحالة الناقلة إلى الحالة العازلة.

**الكلمات المفتاحية:** اللدائن المركبة الناقلة، الجسيمات الناقلة، عتبة الترشيح، معامل ايجابي لدرجة الحرارة، الانتقال من الحالة الناقلة إلى الحالة العازلة

## Résumé

Le travail effectué dans ce mémoire est une contribution à l'étude du comportement thermique et de temps de réponse d'un fusible CTP à base de polymère conducteur composite. Nous examinons les effets de la taille des particules conductrices et la nature de la matrice de polymère sur le temps de basculement de l'état conducteur à l'état isolant, la vitesse d'échauffement et le temps d'équilibre thermique. Pour ce faire, nous examinons dans une première étape le comportement du polymère conducteur formé d'une matrice en PEHD dans laquelle sont noyées des particules en noir de carbone de forme sphérique et de différentes tailles ( $r=50, 100$  et  $150\mu\text{m}$ ).

Nous calculons dans chaque cas le temps nécessaire à la transition état conducteur- état isolant. Dans une deuxième étape, nous examinons l'influence de la nature de la matrice de polymère sur le temps de basculement de l'état conducteur à l'état isolant. Pour ce faire nous comparons le comportement thermique de quatre polymères conducteurs composites (PET/NC), (LDPE/NC), (PP/NC) et (HDPE/NC). Nous calculons dans chaque cas le temps de basculement état conducteur-état isolant.

**Mots clés :** Polymère conducteur composite, matrice, renfort, seuil de percolation, coefficient de température positif (CTP), transition état conducteur- état isolant.

## Abstract

The aim of this work is to bring a contribution to the study of the thermal behavior and response time of a PTC fuse based on a composite conductive polymer. We examine the effects of the size of the conductive particles and the nature of the polymer matrix on the change over time from the conductive state to the insulating state, the heating rate and the thermal equilibrium time. In the first step, we examine, the behavior of the conductive polymer formed by an HDPE matrix in which are embedded carbon black particles of spherical shape and of different sizes ( $r=50, 100$  et  $150\mu\text{m}$ ).

We calculate in each case the necessary time for the transition from conducting state to insulating state. In the second step, we examine the influence of the polymer matrix on the changeover time from the conductive state to the insulating state. To do this we compare the thermal behavior of four composite conductive polymers.

**Keywords :** composite conductive polymer, matrix, reinforces, percolation threshold, positive temperature coefficient PTC, conductive state transition- insulating state.