

# Etude du transfert radiatif dans les matériaux composites semi-transparents à différentes températures

## Radiative transfer analysis in semi-transparent composite materials at different temperatures

Florent RETAILLEAU<sup>1,2\*</sup>, Vadim ALLHEILY<sup>1</sup>, Lionel MERLAT<sup>1</sup>, Jean-François HENRY<sup>2</sup> et Jaona RANDRIANALISOA<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Institut franco-allemand de recherches de Saint-Louis (ISL), 5 rue du Général Cassagnou, BP 70034, 68301 Saint-Louis Cedex, France

<sup>2</sup> Institut de Thermique, Mécanique et Matériaux (ITheMM), Université de Reims Champagne–Ardenne, UFR Sciences Exactes et Naturelles Campus du Moulin de la Housse, BP 1039, 51687 Reims Cedex 2, France

\*(Auteur correspondant : [florent.retailleau@isl.eu](mailto:florent.retailleau@isl.eu))

**Résumé** – Cette étude porte sur l’analyse de la propagation du rayonnement thermique au sein d’un milieu composite semi-transparent diffusant à interfaces rugueuses. L’objectif est d’en identifier les propriétés radiatives (coefficient d’extinction, albédo et fonction de phase) à différentes températures allant de l’ambiante à 200°C. La méthode d’identification (Gauss-Newton) utilise les valeurs de réflectance et transmittance bidirectionnelles. Les résultats expérimentaux sont obtenus à l’aide d’un spectrophotomètre équipé d’un goniomètre et d’un porte-échantillon chauffant et la méthode de Monte Carlo permet de résoudre l’Equation de Transfert Radiatif (ETR) afin d’obtenir les valeurs théoriques.

**Mots-clés** : rayonnement ; composite ; identification ; BRDF/BTDF ; Monte Carlo.

**Abstract** – This study deals with the analysis of the propagation of thermal radiation within a diffusing semi-transparent composite medium with rough interfaces. The aim is to identify the radiative properties (extinction coefficient, albedo, and phase function) at different temperatures ranging from room temperature to 200°C. The identification method (Gauss-Newton) uses bidirectional reflectance and transmittance values. The experimental results are obtained using a spectrophotometer equipped with a goniometer and a heating sample holder, and the Monte Carlo method makes it possible to solve the Radiative Transfer Equation (RTE) in order to obtain the theoretical values.

**Keywords**: radiation; composite; identification; BRDF/BTDF ; Monte Carlo.

### Nomenclature

$Cf_i$	facteur de correction de Fresnel	$\theta$	angle de propagation, rad
$d\omega_0$	angle solide élémentaire, sr	$\theta_0$	angle d’incidence, rad
$g$	facteur d’asymétrie	$\kappa$	coefficient d’absorption
$I_\lambda$	luminance spectrale, $W.m^{-2}.\mu m^{-1}$	$\lambda$	longueur d’onde, m
$I_0$	luminance incidente, $W.m^{-2}.\mu m^{-1}$	$\rho^\cap$	réflectance hémisphérique
$I_r$	luminance réfléchie, $W.m^{-2}.\mu m^{-1}$	$\rho''$	réflectance bidirectionnelle, $sr^{-1}$
$I_t$	luminance transmise, $W.m^{-2}.\mu m^{-1}$	$\sigma$	coefficient de diffusion
$e$	épaisseur du matériau, m	$\sigma_G$	écart type de la gaussienne
$p$	fonction de probabilité	$\tau^\cap$	transmittance hémisphérique
$S_n$	somme des résidus	$\tau''$	transmittance bidirectionnelle, $sr^{-1}$
<i>Symboles grecs</i>		$\phi$	fonction de phase
$\beta$	coefficient d’extinction, $m^{-1}$	$\omega$	albédo
$\varepsilon$	émissivité		

## 1. Introduction

Les matériaux composites sont aujourd'hui incontournables dans de nombreux domaines grâce à leurs caractéristiques techniques (légèreté, solidité, rigidité) et la réduction des coûts de production. Dans plusieurs applications (aéronautique, défense, spatiale, biomédicale, etc.), il est nécessaire de connaître le comportement de ce type de matériaux face à une contrainte thermique radiative. L'objectif est de mieux comprendre la propagation d'un flux lumineux au sein d'un matériau composite semi-transparent diffusant avec des interfaces rugueuses. L'étude se concentre sur les transferts radiatifs dans le visible et le proche infrarouge.

Ces dernières années, de nombreuses études ont été rapportées sur les transferts radiatifs en milieux semi-transparents diffusants [1–3]. On peut notamment citer les travaux sur les matériaux à très forte porosité comme les mousses [2] et les milieux fibreux [4, 5] et ceux sur les matériaux à faible porosité comme les verres à bulles [6] et les céramiques par frittage de poudre [1]. Dans la plupart de ces travaux, les frontières des matériaux sont traitées, soit comme transparentes (cas des mousses et des fibreux), soit comme lisses (cas des milieux peu poreux) aux longueurs d'ondes d'étude. Les quelques travaux sur le transfert radiatif au sein de matériaux composites concernent essentiellement les composites chargés en microparticules tandis que le transfert radiatif dans les matériaux composites à renforts tissés est peu exploré. Une des difficultés sur l'étude du transfert radiatif au sein des milieux composites concerne la présence des frontières rugueuses résultantes du procédé d'élaboration. Ces frontières rugueuses sont difficiles à appréhender du point de vue théorique et leur présence affecte les mesures.

L'étude des transferts radiatifs dans les milieux semi-transparents implique de maîtriser deux aspects : la résolution de l'Equation de Transfert Radiatif (ETR) d'un côté et la détermination des propriétés radiatives volumétriques (coefficient d'absorption, coefficient de diffusion et fonction de phase) et surfaciques (réflectivités et transmittivités aux interfaces) de l'autre.

Dans le cas d'une géométrie complexe, les propriétés radiatives volumétriques peuvent être déterminées par une méthode d'identification basée sur une méthode directe de résolution de l'ETR [7, 8]. L'identification des propriétés radiatives est réalisée à partir des mesures de réflectance et de transmittance hémisphériques. Afin d'identifier le coefficient d'extinction, l'albédo et la fonction de phase de matériaux isolants fibreux, Nicolau et al. [9] utilisent les mesures bidirectionnelles. La fonction de phase utilisée est basée sur la fonction d'Henye et Greenstein. Dans une étude récente, nous avons développé une méthode permettant d'identifier simultanément les propriétés radiatives volumétriques et les propriétés surfaciques de matériaux composites semi-transparents rugueux [10]. La méthode d'identification, méthode de Gauss-Newton, se base sur une combinaison des mesures de réflectance et transmittance hémisphériques et des mesures de réflectance et transmittance bidirectionnelles obtenues avec un spectrophotomètre équipé d'un goniomètre.

Cette méthode a jusque-là été appliquée à des échantillons à température ambiante. Le présent travail se focalise sur l'étude des propriétés radiatives des matériaux composites en température. Le but de ce travail est de déterminer par identification, à différentes températures et avant dégradation ( $\leq 200^\circ\text{C}$ ), les propriétés radiatives volumétriques et les propriétés surfaciques de matériaux composites rugueux et ainsi de suivre l'évolution du comportement radiatif de ce type de matériau en fonction de la température.

## 2. Méthode

### 2.1. Matériaux étudiés

Les matériaux utilisés dans la présente étude sont des composites stratifiés de qualité aéronautique à base d'époxy et renforcés par des fibres de verre. Ce type de matériau est composé de plusieurs couches de fibres qui s'empilent avec des orientations variables comme le montre la vue en coupe obtenue par microscope électronique à balayage (Figure 1). L'étude a été réalisée sur plusieurs types de composite verre/époxy d'épaisseurs différentes. Les surfaces de ses échantillons présentent une rugosité de l'ordre du micromètre, comparable aux longueurs d'onde d'étude.

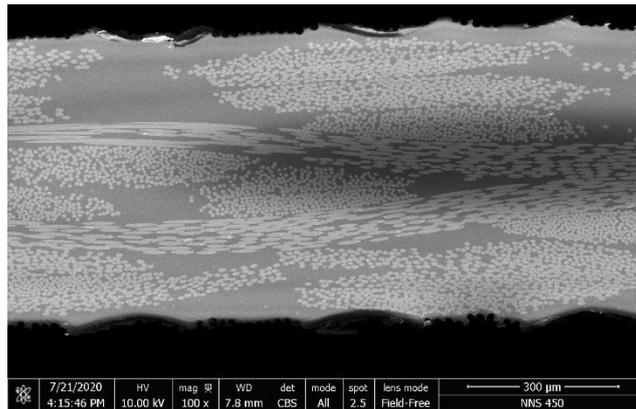


Figure 1 : Vue en coupe d'un échantillon composite verre/époxy de 0,76 mm d'épaisseur.

### 2.2. Mesures

La mesure de la réflectance et de la transmittance hémisphériques ( $\rho^{\text{h}}$  et  $\tau^{\text{h}}$ ) est établie à l'aide d'un détecteur de type intégrateur (sphère intégrante). La mesure de la réflectance et de la transmittance bidirectionnelles ( $\rho''$  et  $\tau''$ ) est plus complexe. Le dispositif doit disposer d'un détecteur mobile, par exemple monté sur un bras goniométrique. Le spectrophotomètre Cary 7000 de Agilent que nous utilisons dispose pour cela du dispositif Universal Measurement Accessory (UMA) qui est équipé d'un détecteur mobile à  $340^\circ$  et d'un porte échantillon capable d'effectuer une rotation complète autour de son axe vertical (Figure 2). Le contrôle de la température est assuré par un porte échantillon chauffant pouvant atteindre les  $300^\circ\text{C}$ . Le chauffage se fait par effet Joule et permet une chauffe homogène à  $\pm 3,5\%$  d'une surface de diamètre 20 mm. La mesure de température est effectuée par thermographie infrarouge à l'aide d'une caméra FLIR A655sc dont la précision en température est de  $\pm 2\%$ . L'émissivité est connue avec une précision de  $\pm 2\%$ .

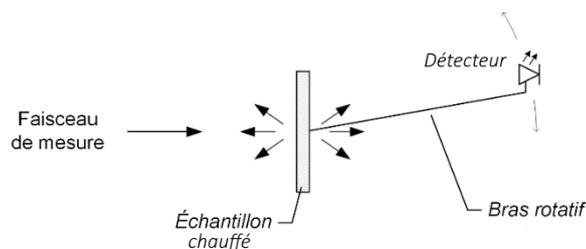


Figure 2 : Schéma de la mesure au spectromètre de la réflectance ou de la transmittance bidirectionnelles à l'aide d'un capteur goniométrique.

La réflectance bidirectionnelle, Eq. (1), est le rapport de l'intensité du rayonnement réfléchi par le milieu en  $z = 0$  dans une direction d'angle  $\theta$  et du flux radiatif externe incident en  $z = 0$ , dans un angle solide élémentaire  $d\omega_0$  (Figure 3).

De même, la transmittance bidirectionnelle, Eq. (2), est le rapport de l'intensité du rayonnement transmis à travers le milieu en  $z = e$  dans une direction d'angle  $\theta$  et du flux radiatif externe incident en  $z = 0$ , dans un angle solide élémentaire  $d\omega_0$ .

$$\rho''(\theta, \varphi) = \frac{I_r(0, \theta, \varphi)}{I_0 \cos(\theta_0) d\omega_0} \quad (1)$$

$$\tau''(\theta, \varphi) = \frac{I_t(e, \theta, \varphi)}{I_0 \cos(\theta_0) d\omega_0} \quad (2)$$

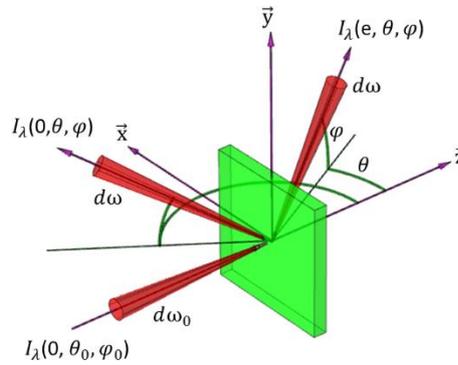


Figure 3 : Représentation de la transmittance et de la réflectance bidirectionnelles.

## 2.3. Approche théorique

### 2.3.1. Equation de transfert radiatif

L'ETR sous sa forme générale permet d'exprimer la variation de la luminance spectrale  $I_\lambda$  à l'abscisse  $s$  et dans la direction  $(\theta, \varphi)$  en prenant en compte les phénomènes d'émission, d'absorption et de diffusion du rayonnement. Dans cette étude, le milieu semi-transparent est considéré comme froid (sans émission propre). L'ETR s'écrit alors sous la forme suivante :

$$\frac{\partial I_\lambda(s, \theta, \varphi)}{\partial s} = -(\kappa_\lambda + \sigma_\lambda) I_\lambda(s, \theta, \varphi) + \frac{\sigma_\lambda}{4\pi} \int_0^{4\pi} \phi_\lambda(\theta, \varphi, \theta', \varphi') I_\lambda(s, \theta, \varphi) d\omega' \quad (3)$$

Tous les paramètres sont dépendants de la longueur d'onde, cependant par souci de clarté, le symbole  $\lambda$  ne sera plus affiché par la suite.

### 2.3.2. Conditions limites

Les conditions aux limites (4) et (5) décrivent les luminances quittant les frontières. Le milieu étant semi-transparent, une partie du flux est transmise, l'autre est réfléchi à chaque interface. Par la suite,  $\mu = \cos \theta$ . Le système est considéré comme semi-infini suivant les directions  $x$  et  $y$ .

$$I(0, \theta, \varphi) = (1 - r_{12}(\mu_0, \mu))I(0, \theta_0, \varphi_0) + \int_0^{2\pi} \int_0^1 r_{21}(\mu', \mu)I(0, \theta', \varphi')\mu' d\mu' d\varphi', \quad (4)$$

$$0 \leq \theta < \frac{\pi}{2}, \theta' = \cos^{-1}\mu' + \frac{\pi}{2}$$

$$I(e, \theta, \varphi) = \int_0^{2\pi} \int_0^1 r_{21}(\mu', \mu)I(e, \theta', \varphi')\mu' d\mu' d\varphi', \quad (5)$$

$$\frac{\pi}{2} < \theta \leq \pi, \theta' = \cos^{-1}\mu'$$

Avec  $r_{ij}(\mu_0, \mu)$  la réflectivité de Fresnel corrigée due à la présence d'une frontière diffusante tel que :

$$r_{ij}(\mu', \mu) = R(\mu')Cf_{ij}p(\mu) \quad (6)$$

Avec  $Cf_{ij}$  un facteur de correction pour chaque interface obtenu par identification des données expérimentales [11],  $R(\mu')$  le coefficient de Fresnel avec  $\mu' = \cos \theta'$  et  $p(\mu)$  une fonction de probabilité choisie pour mieux représenter la distribution angulaire du rayonnement à l'interface. Le choix de cette fonction de probabilité  $p(\mu)$  est lié au caractère diffusant de l'interface. Pour une surface grise et diffusante isotrope, la fonction de probabilité choisie est de type :

$$p(\mu) = \mu \quad (7)$$

Pour une paroi partiellement diffuse une moyenne entre la relation (7) une fonction Gaussienne d'écart type  $\sigma_G$ , Eq. (8), est proposée comme fonction de probabilité.

$$p(\mu) = e^{-\frac{(\cos^{-1}\mu)^2}{2\sigma_G^2}} \quad (8)$$

### 2.3.3. Fonction de phase

La fonction de phase présente dans l'ETR, Eq. (3), peut être déterminée grâce à la théorie de Mie. Néanmoins il est courant de recourir à des approximations de la fonction de phase pour des raisons de simplicité. Une des plus utilisée est l'approximation de Henyey & Greenstein [12] qui représente un bon compromis entre l'approximation de transport, peu précise, et la théorie exacte de Mie. Elle se présente sous la forme suivante avec  $g$  le paramètre d'asymétrie appartenant à l'intervalle  $]-1,1[$ .

$$\phi_{HG}(\theta) = \frac{1 - g^2}{(1 + g^2 - 2g\cos\theta)^{3/2}} \quad (9)$$

### 2.3.4. Méthode de résolution

La méthode de Monte Carlo convient parfaitement au problème de transfert radiatif, comme l'ont montré Fleck [13] puis Howell et Perlmutter [14]. Elle permet de suivre le comportement des photons à travers un milieu semi-transparent. Il n'est pas nécessaire d'effectuer d'approximation des phénomènes radiatifs ce qui rend la méthode numériquement précise.

## 2.4. Identification des propriétés radiatives

Le principe de la méthode d'identification est basé sur la minimisation des écarts quadratiques entre la mesure faite à chaque température étudiée et le calcul théorique :

$$S_n = \sum_i (x_{t,n}(i) - x_{e,n}(i))^2 \quad (10)$$

avec  $x_{t,n}(i)$  la valeur théorique de la réflectance ou de la transmittance bidirectionnelles ou hémisphériques à l'itération  $n$  et à l'indice  $i$  de la quadrature, et  $x_{e,n}(i)$  l'équivalent pour les valeurs expérimentales.

Plusieurs méthodes de minimisation existent, mais la méthode retenue ici est la méthode de minimisation par les moindres-carrés associée à la méthode de Gauss-Newton [15] qui résout le système suivant :

$$(J^T J) \delta p = J^T r \quad (11)$$

avec  $J$  la matrice jacobienne (soit la matrice des dérivées partielles du premier ordre de l'ETR),  $\delta p$  le vecteur des incréments des paramètres identifiés et  $r$  le vecteur des résidus. La taille de la matrice jacobienne est dépendante du nombre de paramètres identifiés. Dans le cas présent, 6 paramètres sont identifiés : le coefficient d'extinction  $\beta$  et l'albédo  $\omega$ , tel que :

$$\beta = \kappa + \sigma \quad (12)$$

$$\omega = \frac{\sigma}{\kappa + \sigma} = \frac{\sigma}{\beta} \quad (13)$$

mais également le facteur d'asymétrie  $g$ , les deux coefficients de correction de Fresnel  $Cf_{12}$  et  $Cf_{21}$  (Eq. (6)) et l'écart type  $\sigma_G$  de la gaussienne (Eq. (8)). La taille de la matrice dépend aussi du nombre de mesures. En utilisant la réflectance et la transmittance hémisphériques et bidirectionnelles, 38 valeurs expérimentales sont disponibles.

## 3. Résultats

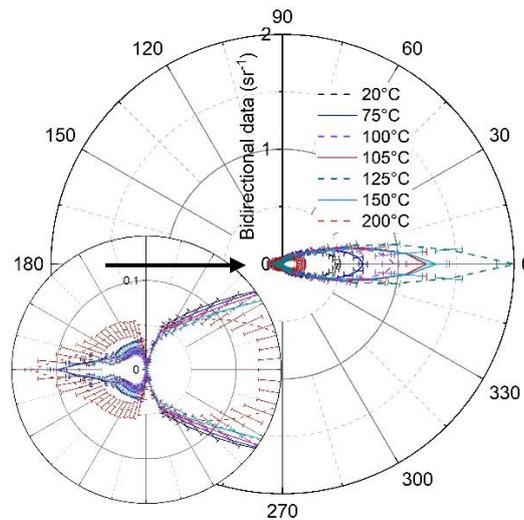


Figure 4 : Réflectance et transmittance bidirectionnelles d'un échantillon verre/époxy de 3 mm à 1070 nm à différentes températures. (La flèche noire représente le flux radiatif incident)

La figure 4 présente les lobes expérimentaux de la transmittance et de la réflectance bidirectionnelles à 1070 nm pour un échantillon de verre/époxy de 3 mm d'épaisseur à différentes températures. Les mesures ont été effectuées sur 5 échantillons. L'encart en bas à gauche est un zoom sur le lobe de réflexion. Cette mesure permet de constater que le comportement radiatif de ce type de composite est clairement dépendant de sa température avant même sa dégradation. La transition vitreuse de la résine, mesurée auparavant par DSC autour de 105 °C, semble être à l'origine d'une variation du comportement radiatif.

Les trois propriétés volumiques radiatives obtenues par identification à 1070 nm à différentes températures pour un échantillon de verre/époxy de 3 mm (16 plis) sont présentées en Figure 5. Ces résultats sont les moyennes des identifications effectuées pour les 5 échantillons. L'albédo  $\omega$  et le facteur d'asymétrie  $g$  varient peu avant la transition vitreuse. Ce résultat est cohérent puisque ces deux propriétés volumétriques sont liées au caractère diffusant du matériau, induit par la présence de fibres de verre peu sensibles à ces niveaux de température. Ces propriétés de diffusion diminuent ensuite du fait de l'opacification du matériau. Le coefficient d'extinction diminue avec l'augmentation de la température jusqu'à atteindre un minimum une fois la transition vitreuse terminée. Il augmente ensuite en raison de la dégradation et de l'opacification de la résine provoquées par la hausse de température.

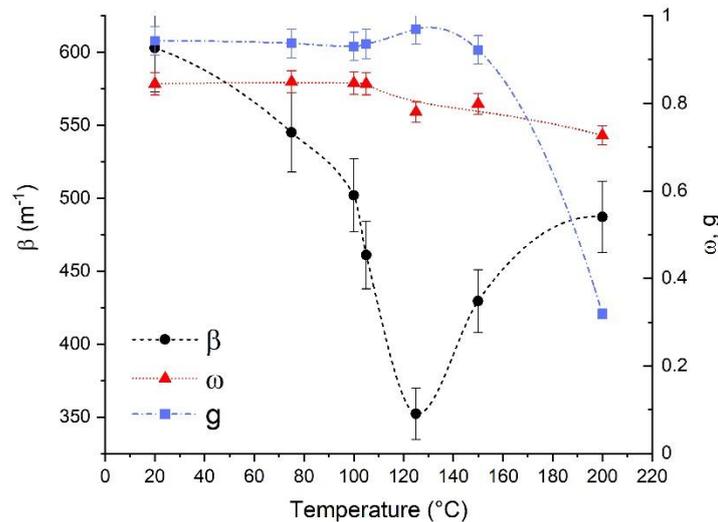


Figure 5 : Propriétés radiatives des échantillons verre/époxy à 1070 nm en fonction de la température.

## 4. Conclusion

La méthode de Monte Carlo est utilisée afin de résoudre l'ETR dans laquelle la fonction de phase est approximée grâce à la fonction d'Henye & Greenstein. Les frontières sont traitées comme des interfaces semi-transparentes et diffusantes. Le modèle direct est constitué de six inconnues : trois propriétés volumétriques (le coefficient d'absorption, l'albédo et le facteur d'asymétrie) et trois propriétés de diffusions surfaciques. Un dispositif spectrométrique équipé d'un goniomètre et d'un porte échantillon chauffant permet de mesurer les transmittances et réflectances bidirectionnelles sur 36 directions de diffusions réparties uniformément autour de l'échantillon à différentes températures. Un modèle d'identification utilisant la méthode de Gauss-Newton permet d'identifier les propriétés radiatives volumétriques de matériaux composites semi-transparentes et rugueux. Cette méthode permet de suivre l'évolution des

propriétés volumétriques d'un matériau semi-transparent en fonction de sa température. Et possiblement d'identifier des changements d'état comme la transition vitreuse.

## Références

- [1] Dombrovsky, L.A., Randrianalisoa, Jaona, Lipinski, W & Baillis, D. Approximate analytical solution to normal emittance of semi-transparent layer of an absorbing, scattering, and refracting medium. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*. 2011. N° 112.
- [2] Coquard, R, Baillis, Dominique & Randrianalisoa, Jaona. Homogenous phase and multi-phase approaches for modeling transfer in foams. *International Journal of Thermal Sciences*. 2011.
- [3] Boulet, P, Jeandel, G & Morlot, G. Model of radiative transfer in fibrous media - matrix method. . 1993.
- [4] Bissieux, C., Henry, J.F. & Egee, P. Caractérisation radiative de matériaux semi-transparents diffusants à l'aide d'un modèle à quatre flux. *Revue Générale de Thermique*. 1994. Vol. 392-393, pp. 470-479.
- [5] Henry, J-F., Bissieux, C., Marquié, S. & Gillet, Y. One-dimensional modelling and parameter estimation in scattering media. *High Temperatures-High Pressures*. 1997. Vol. 29, n° 2, pp. 159-164.
- [6] Randrianalisoa, J, Baillis, D. & Pilon, Laurent. Improved Inverse Method for Radiative Characteristics of Closed-Cell Absorbing Porous Media. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*. 2006. Vol. 20, n° 4.
- [7] Hale, M.J. & Bohn, M.S. Measurement of the radiative transport properties of reticulated alumina foams. *ASME-ASES Joint Solar energy Conf*. 1993.
- [8] Baillis, D. & Sacadura, J. Thermal radiation properties of dispersed media: theoretical prediction and experimental characterization. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*. 2000. Vol. 67, pp. 327-363.
- [9] Nicolau, V.P., Raynaud, M. & Sacadura, J. Spectral radiative properties identification of fiber insulating materials. *Journal of Heat Transfer*. 1994. Vol. 37, pp. 311-324.
- [10] Retailleau, F., Allheily, V, Merlat, L., Henry, J-F. & Randrianalisoa, J. Experimental characterization of radiative transfer in semi-transparent composite materials with rough boundaries. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*. 2020. Vol. 256.
- [11] Lai Jia Jiun. *The Thermal Impact on Energy Conversion Efficiency of Thin-Film Amorphous Silicon Photovoltaic Cells Enhanced With Nanoparticles*. Melbourne : Swinburne University of Technology, 2018.
- [12] Modest, M. *Radiative Heat Transfer, second edition*. Academic Press, 2003.
- [13] Fleck, J.A. The calculation of nonlinear radiation transport by a Monte Carlo method. *Technical Report UCRL- 7838, Lawrence Radiation Laboratory*. 1961.
- [14] Howell, J.R. & Perlmutter, M. Monte Carlo solution of thermal transfer through radiant media between gray walls. *Journal of Heat Transfer*. 1964. Vol. 86, n° 1, pp. 116-122.
- [15] Beck, J., James, V. & Arnold, K.J. *Parametre Estimation in Engineering and Science (Probability & Mathematical Statistics)*. John Wiley & Sons, 1977.