



UNIVERSITÉ DE NANTES



École d'ingénieurs de l'université de Nantes



# ***Influence des conditions de mise en forme sur les propriétés radiatives de polymères semi-cristallins***

HAKOUME Donia  
Directeur du thèse: ROUSSEAU Benoit  
Co-directeur: DELAUNAY Didier



# Introduction

- **Composites sont largement employés comme matériaux de structures dans:**
  - L'automobile
  - L'aérospatiale
  - L'aéronautique
  - La construction
  - Domaine du sport, naval et éolienne.



- **En raison de leurs propriétés particulières :**
  - Faible dilatation
  - Résistance chimique
  - Résistance mécanique
  - Légèreté

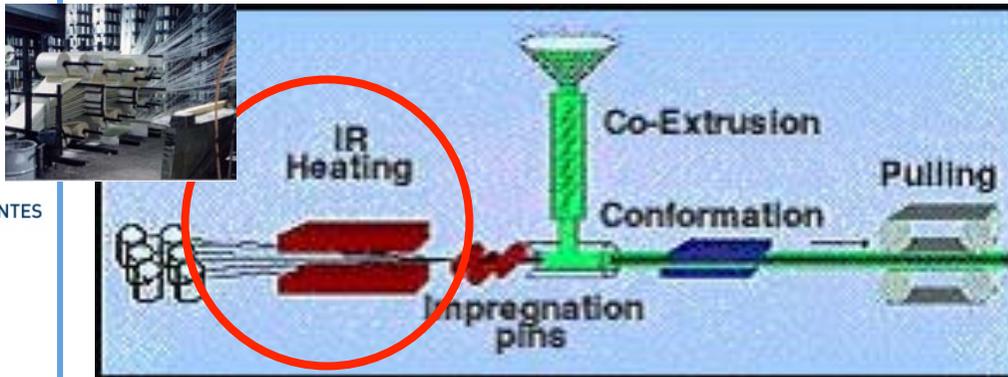




# Mise en forme des composites

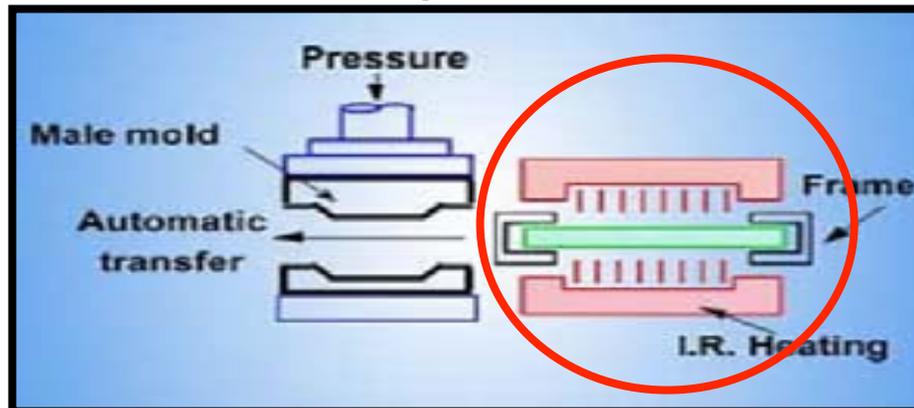
## Rayonnement thermique ?

- *La pultrusion:*



- 1- Le renfort (tissu, mat, fibres) conditionné en bobine
- 2- Imprégné de résine par passage dans un bain et tiré à travers une longue filière chauffée
- 3- Le passage dans ce four va provoquer la polymérisation de la résine thermodurcissable et donner la forme finale.

- *La thermoformage*



Technique qui consiste à prendre un matériau sous forme de plaque, à le chauffer pour le ramollir, et à profiter de cette ductilité pour le mettre en forme avec un moule

Site web: <http://www.compositec.com>  
<http://www.thermoformage.com>





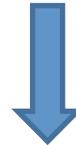
# Problématique

## ❖ *Le verrou industriel :*

*Connaissance des propriétés radiatives*



*Mauvaise maîtrise du procédé d'élaboration*



*Coûteuses compagnes d'essais*



## ❖ *Le Verrou scientifique*

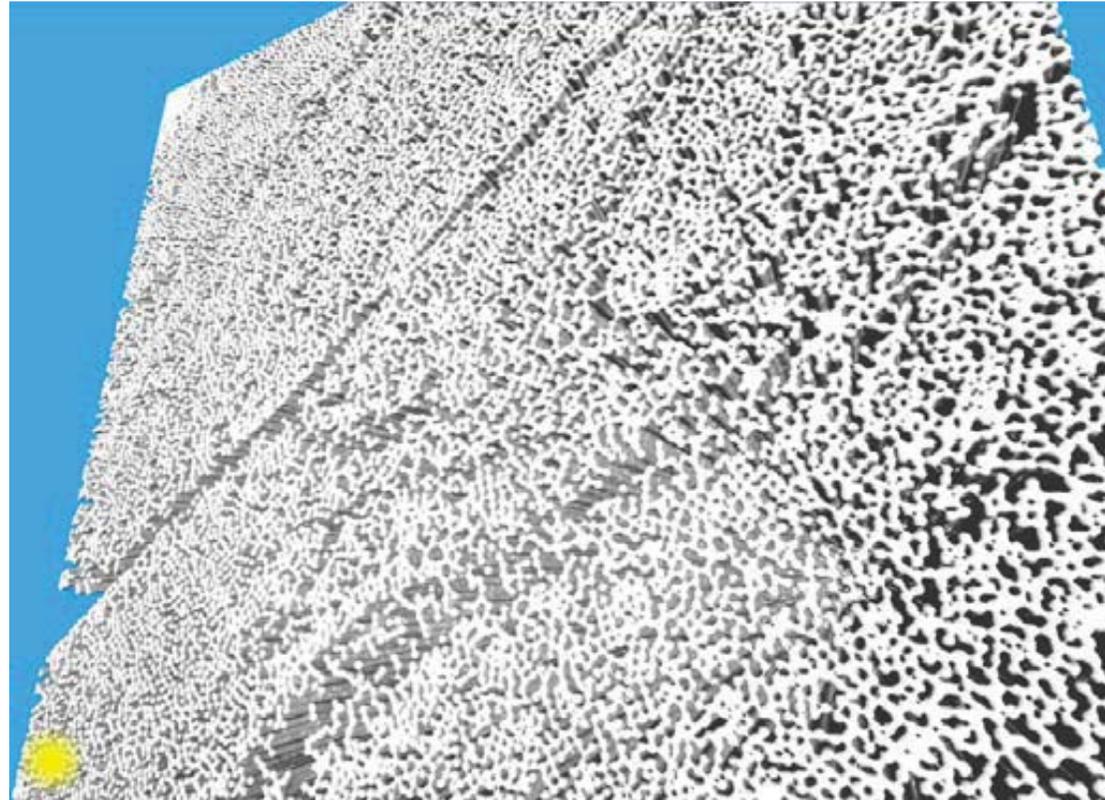
- *Agissement sur la texture du matériau*
- *Efficacité énergétique*





# Image 3D: $\mu$ -tomographie X

Image fournie par Nicolas BOYARD (LTN)



T=300K



*Image 3D d'un composite contenant 60% en masse de fibre de verre E (st-gobain).  
Dimension 2900x2900x1450  $\mu\text{m}$  (Thèse O.Ringa LEMTA Nancy, co-directeur: Jeandel-Rousseau-Favennec)*





# Objectifs

***Une meilleure compréhension des échanges de chaleur impliquant le rayonnement IR dans les opérations de mise en forme des composites polymères***



***Détermination des indices optiques de la matrice polymère (polypropylène semi-cristallin) en tenant compte de la morphologie 3D du matériau***



***La modélisation des échanges radiatifs par la méthode de lancer de rayons dans le polypropylène en suivant les lois de l'optique géométrique***





# Outils utilisés



UNIVERSITÉ DE NANTES

***Méthode inverse (adding-doubling) qui permet de déterminer les coefficients spectraux caractéristiques de la matrice: l'épaisseur optique, l'albédo et la fonction du phase***



École d'ingénieurs de l'université de Nantes





# Polypropylène: matériau modèle LTN

Description	MFI 2.16 (g/10min)	Température (°C)
PP	40	230

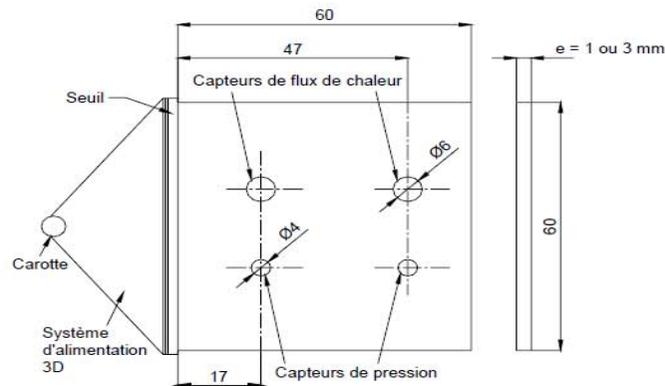




# Procédé d'injection Industriel:

## LTN

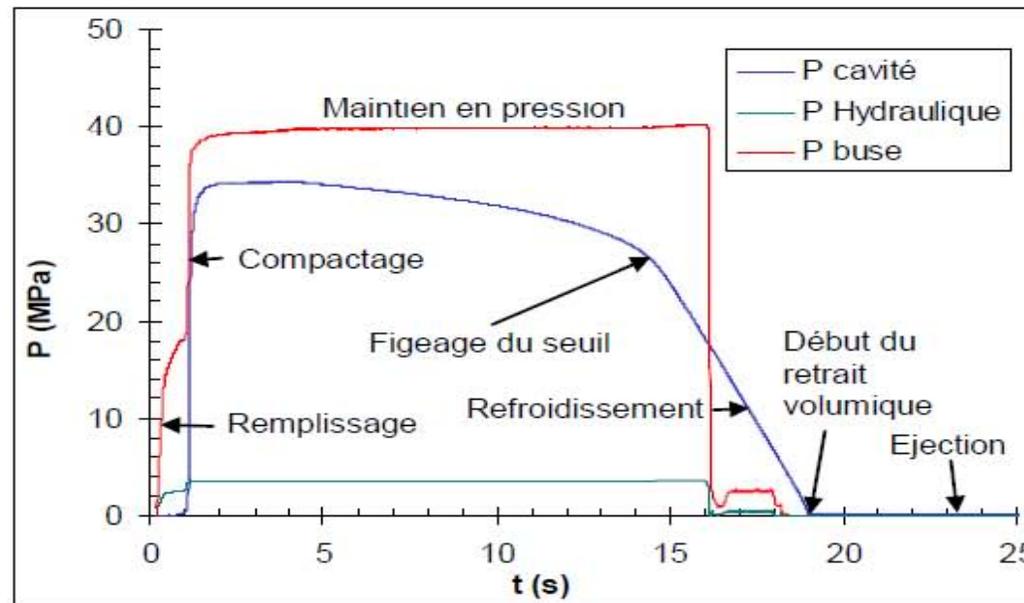
- Un procédé de mise en forme par moulage qui permet de réaliser en grande série des pièces de géométrie complexe
- **Principe:** consiste à faire entrer un polymère à l'état fondu dans un moule froid, l'ouverture du moule et l'éjection de la pièce s'effectuant lorsque le polymère s'est solidifié et a pris la forme du moule





# Cycle d'injection semi Industriel

1. La phase de remplissage de courte durée (d'une fraction de seconde à quelques secondes pour les grandes pièces);
2. La phase de maintien en pression ( de quelques secondes à 30s pour les pièces massives);
3. La phase de refroidissement complémentaire;
4. L'ouverture du moule et l'éjection de la pièce.





# Conditions d'injection

- **les conditions d'injection:**

<i>Echantillon</i>	<i>PP</i>
Température matière (°C)	220
Pression de maintien (Mpa)	80
Temps de maintien (s)	15
Temps de refroidissement (s)	20
Épaisseur (mm)	3

- **Paramètres variés :**

Température du moule : 40°C, 80°C et 120°C

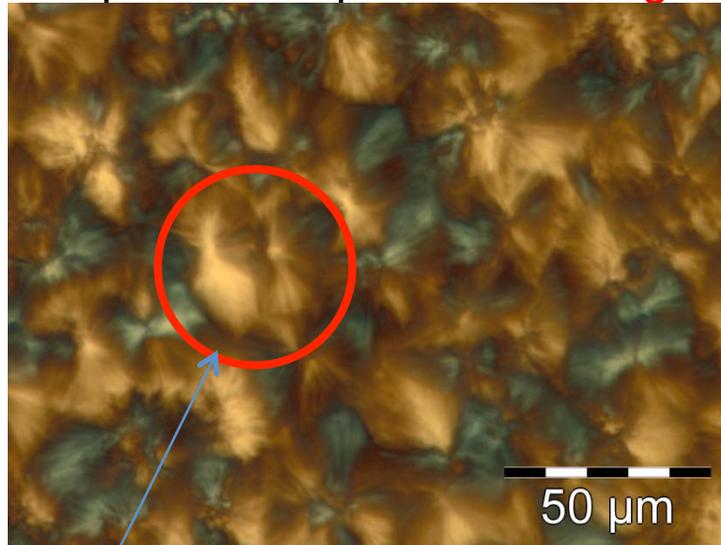




# Microscope optique 2D

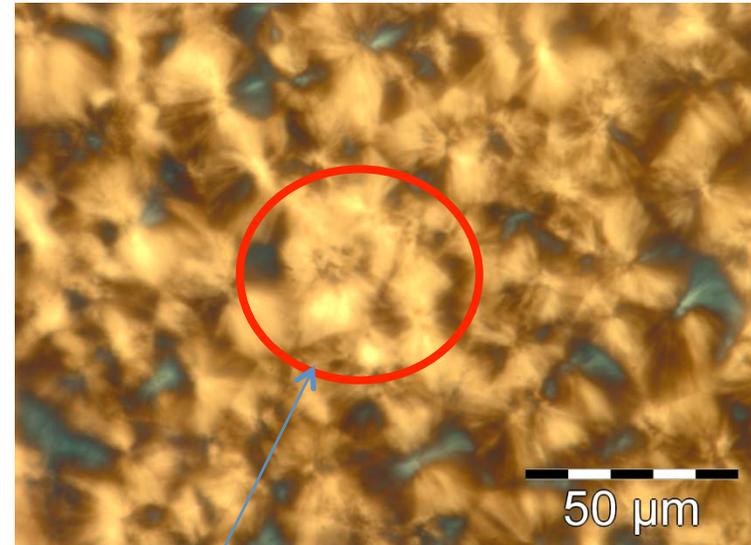
- Echantillon : PP
- Epaisseur: 7 $\mu$ m

Image à cœur dans l'échantillon



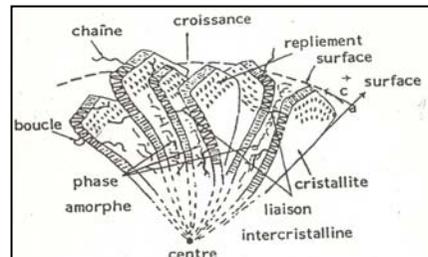
Diamètre sphérolite = 40  $\mu$ m

T= 40°C



Diamètre sphérolite = 60  $\mu$ m

T=80°C





# Inverse Adding-Doubling

- Technique développée par Scott Prahl (Directeur du programme d'optoélectronique à l'Institut de technologie de l'Oregon)
- Méthode numérique qui sert à calculer les propriétés optiques d'un matériau à partir de la transmission et de réflexion observée.
- **Définition:**

$$a = \frac{\mu_s}{\mu_s + \mu_a}$$

Et

$$\tau = d(\mu_s + \mu_a)$$

La fonction de phase  $P(\theta)$  (fonction de **Henye-Greenstein**) décrit la quantité de lumière diffusée à un angle de la direction d'arrivée exprimée par:

$$P(\nu) = \frac{1}{4\pi} \frac{1 - g^2}{(1 + g^2 - 2g\nu)^{3/2}}$$

Avec

$$g = \int_{4\pi} p(\nu) \nu d\omega = 2\pi \int_{-1}^1 p(\nu) \nu d\nu$$

Avec:

$a$  : Albédo ,  $\tau$  : l'épaisseur optique ,  $\mu_s$  : coefficient de diffusion,  $\mu_a$  : Coefficient d'absorption  
 $\nu$  :  $\cos(\theta)$  ,  $d\omega$ : angle solide différentiel ,  $g$  : coefficient d'anisotropie et  $\theta$  : isotropie azimutal



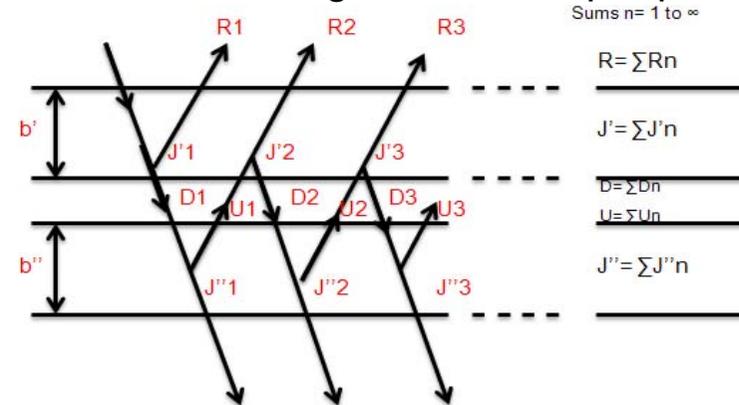
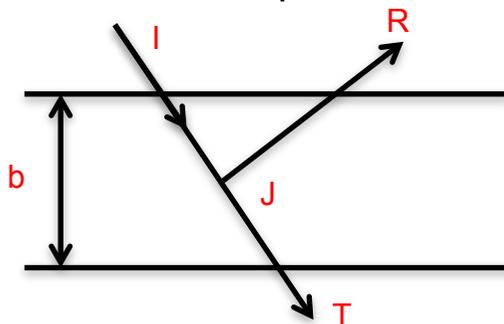


# Inverse Adding-Doubling

## Principe:

Méthode Introduite par Van de Hulst (astronome néerlandais) qui génère des estimations rapides et précises de répartitions de la lumière dans les tissus biologiques « A new look at multiple scattering »

pour résoudre l'équation de transfert radiatif dans une géométrie de plaque



### a) prototype: Couche unique

Avec:

R: réflexion

I: Incident

J: densité de rayonnement

T: Transmission      b: épaisseur optique

### b) double couche

Site web:

<http://omlc.bme.ogi.edu/pubs/pdf/prahl93a.pdf>  
<http://omlc.bme.ogi.edu/software/iad/index.html>

<http://omlc.ogi.edu/>





# Inverse Adding-Doubling



UNIVERSITÉ DE NANTES



École d'ingénieurs de l'université de Nantes



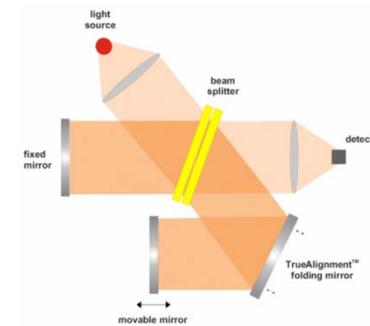
Entrées	Sorties
Indice de réfraction de l' échantillon	Valeur de Transmission N-H
Domaine de longueur d' onde	Valeur de Transmission N-N
Epaisseur de l' échantillon	Valeur de Réflexion N-H
Diamètre du faisceau de lumière	Coefficient de diffusion
Valeur mesurés de Transmission N-H	Coefficient d' absorption
Valeur mesurés de Transmission N-N	Coefficient d' anisotropie
Valeur mesurés de Réflexion N-H	



# Caractérisation des propriétés optiques



Octobre 2012  
280 K€

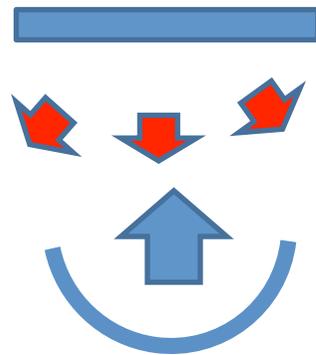
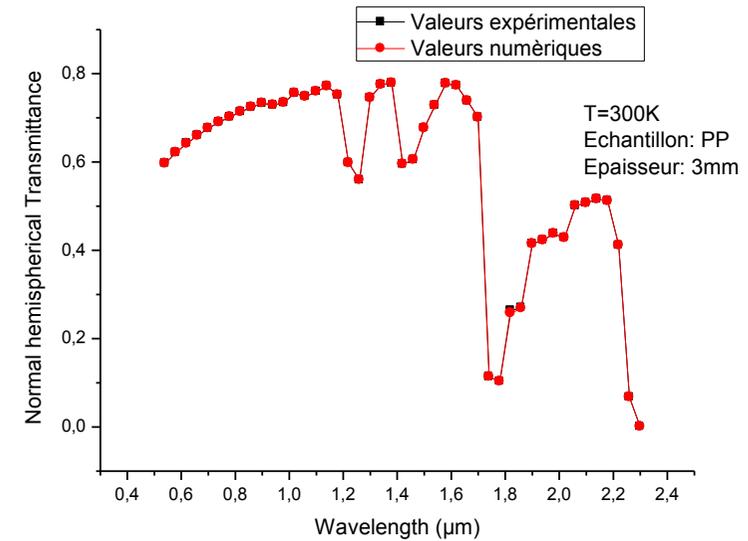
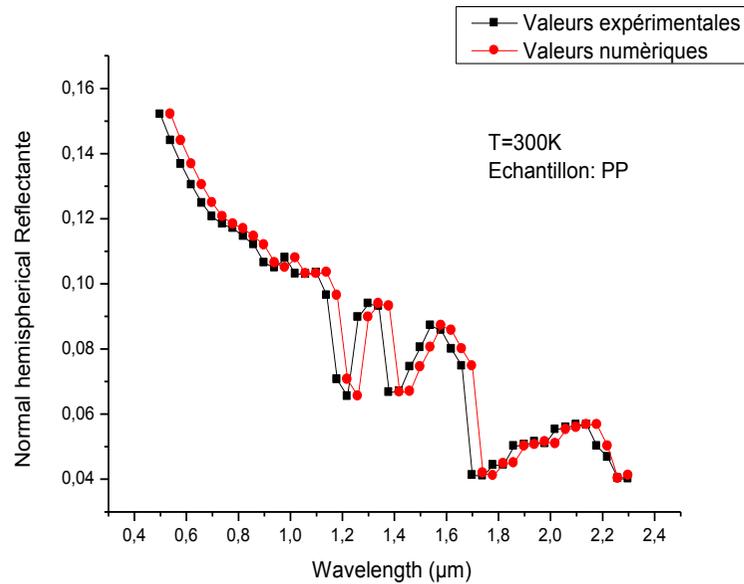


Réflectance, transmittance, émittance  
IR lointain → UV (10 à 50000  $\text{cm}^{-1}$ )  
T=300K

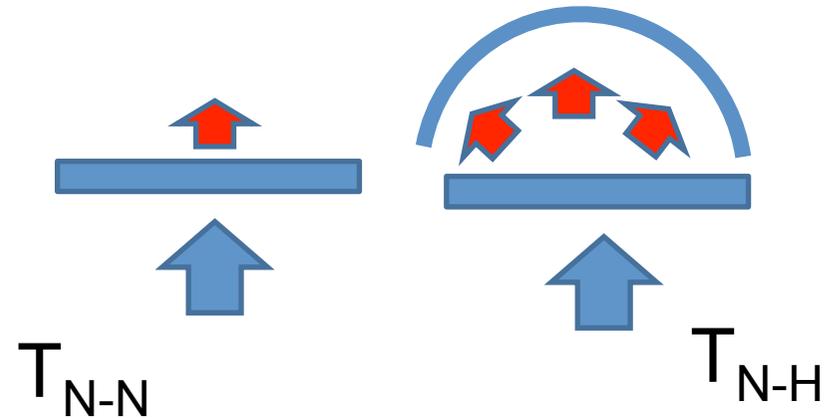




# Matrice de polymère en PP



$R_{N-H}$



$T_{N-N}$

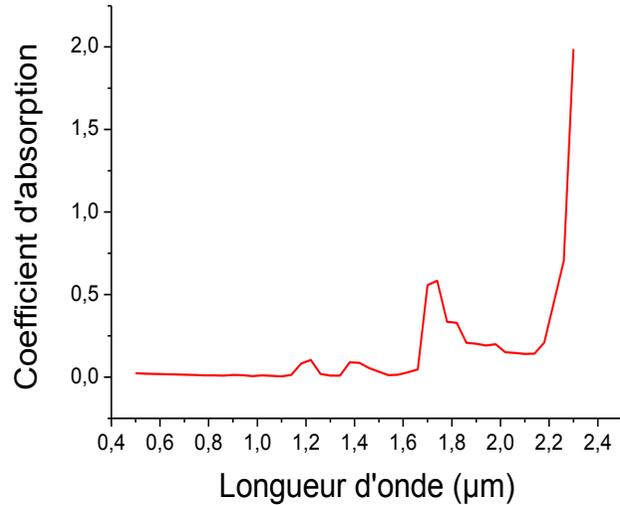
$T_{N-H}$



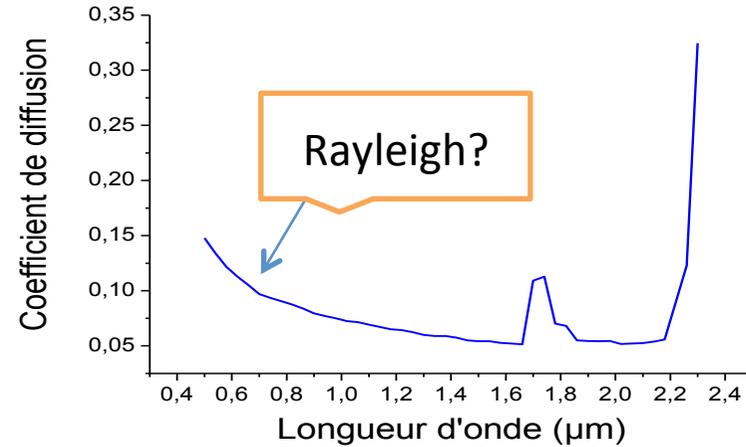
# Les propriétés radiatives directes



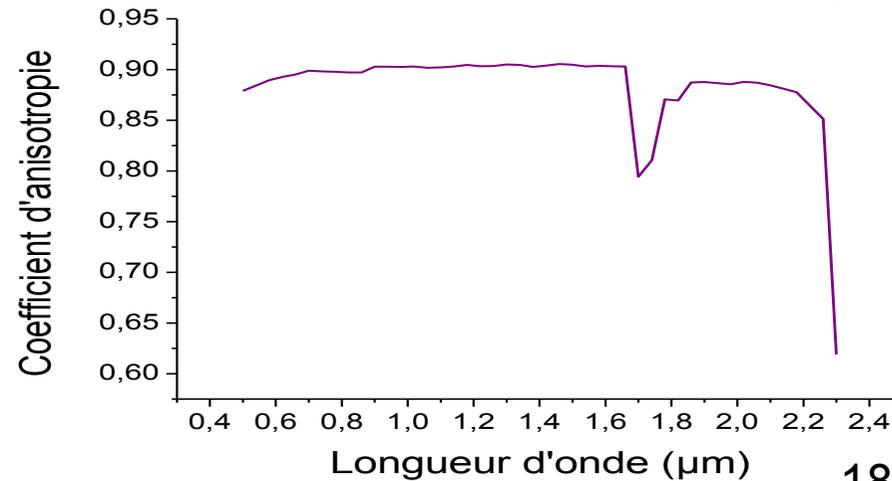
Coefficient d'absorption en fonction de la longueur d'onde



Coefficient de diffusion en fonction de la longueur d'onde



Coefficient d'anisotropie en fonction de la longueur d'onde

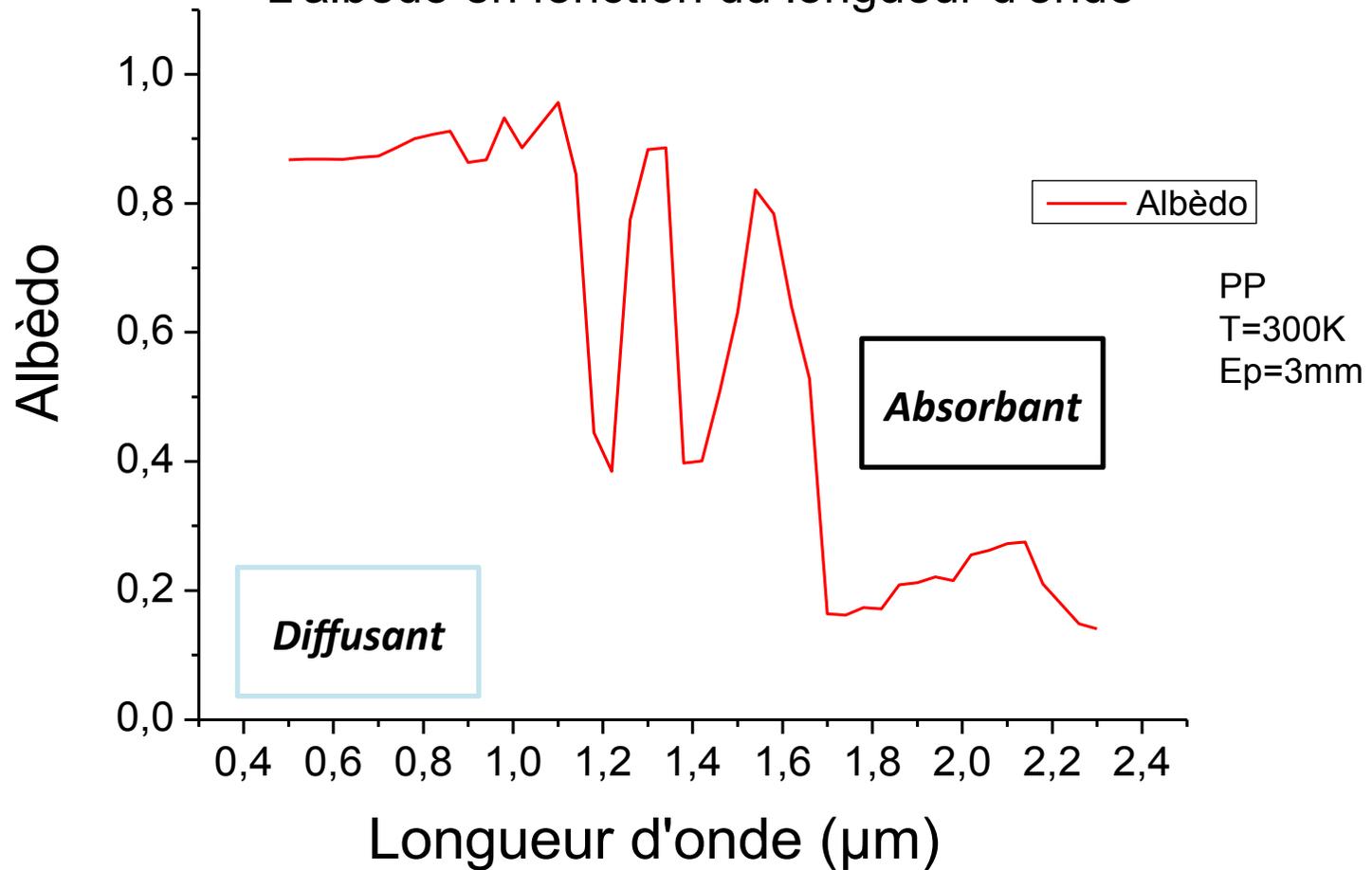




# Les propriétés radiatives indirectes



L'albèdo en fonction du longueur d'onde

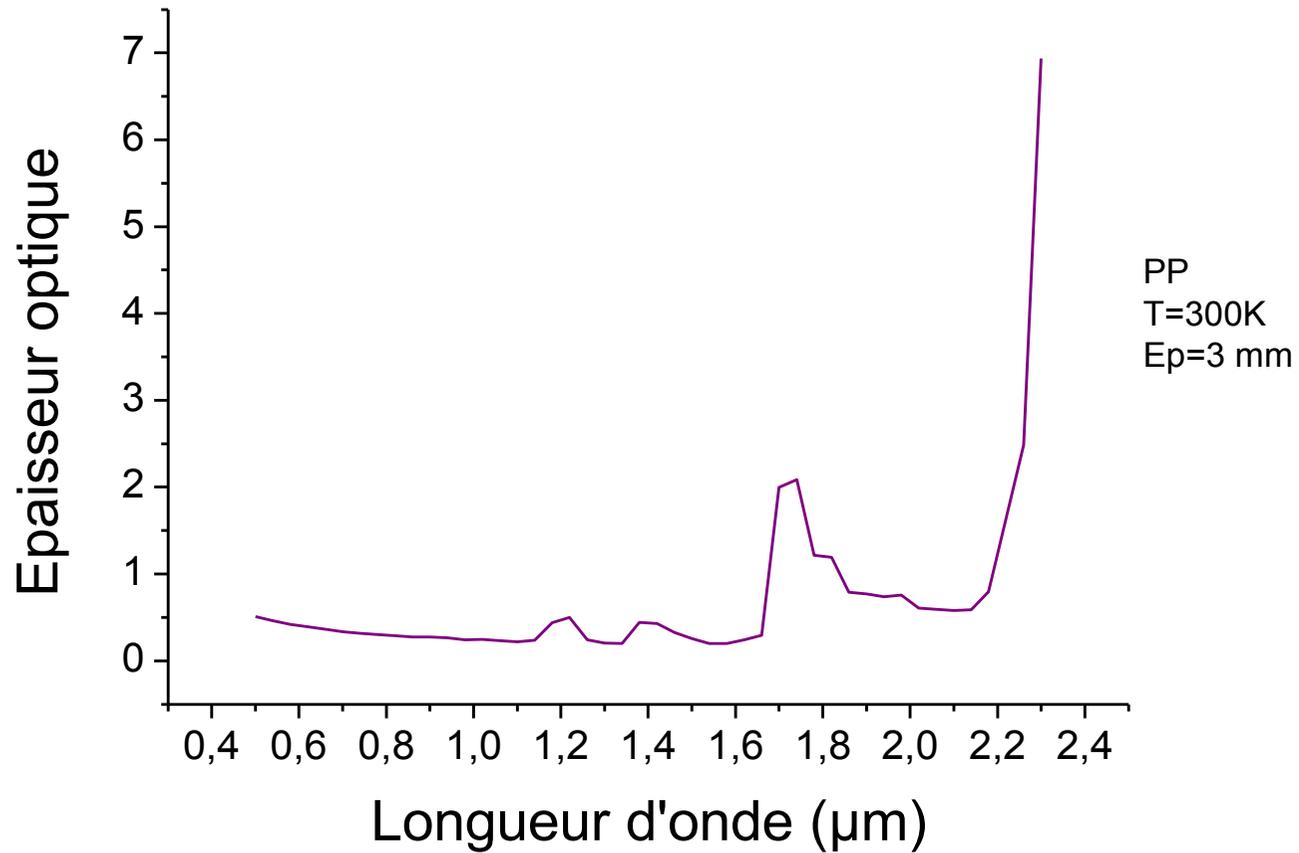




# Les propriétés radiatives indirectes

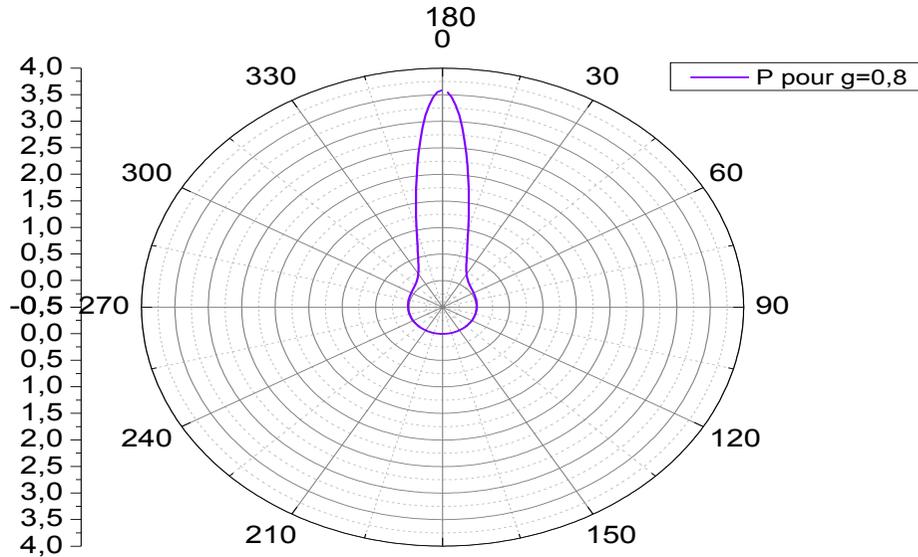
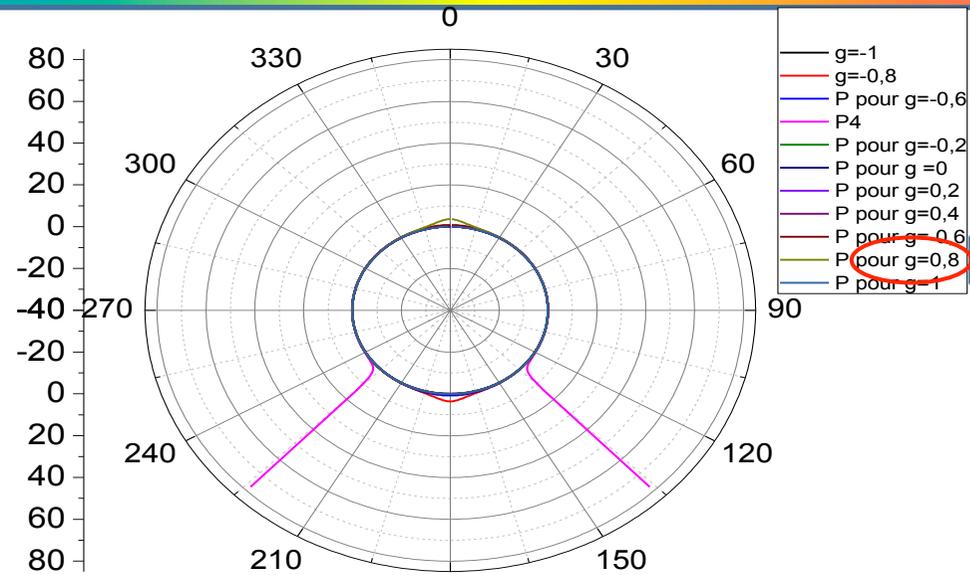


L'épaisseur optique en fonction de la longueur d'onde





# Fonction du phase



Fonction du phase en fonction de Teta et pour  $g=0,8$



# Conclusion

Etude sur le polymère semi-cristallin

Elaboration des échantillons à texture contrôlée

Mise en évidence les coefficients d'absorption, de diffusion et d'anisotropie par méthode:

- Expérimentale
- Numérique ( Adding-Doubling Method)





# Perspectives

- Maîtrise des échantillons
- Caractérisation par spectrométrie IR pour mesurer :
  1. La réflectance normale normale
  2. La réflectance normale hémisphérique ( sphère intégrante dorée)
  3. La transmittance normale normale
  4. La transmittance normale hémisphérique ( sphère intégrante dorée)
- Caractérisation optique des sphérolites (microscope optique)
- Effectuer de l'imagerie  $\mu$ -Raman au CEMHTI d'Orléans (pour mieux connaître la cristallinité locale des sphérolites)
- Utilisation du méthode « Monte-carlo tracing (MCRT )» pour modéliser les propriétés radiatives du polypropylène avec sphérolite
- Cinétique des cristallisations





UNIVERSITÉ DE NANTES



*Merci de votre attention*

