HAL
open science

Simulation de la polymérisation par infrarouge du composite

Sawsane Nakouzi, Johann Pancrace, Fabrice Schmidt, Yannick Le Maoult, Florentin Berthet

To cite this version:

Sawsane Nakouzi, Johann Pancrace, Fabrice Schmidt, Yannick Le Maoult, Florentin Berthet. Simulation de la polymérisation par infrarouge du composite. SFT, May 2011, Perpignan, France. hal-02057091

HAL Id: hal-02057091

https://hal.science/hal-02057091v1

Submitted on 5 Mar 2019

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

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

Simulation de la polymérisation par infrarouge du composite.

Sawsane NAKOUZI, Johann PANCRACE, Fabrice SCHMIDT, Yannick LE MAOULT, Florentin BERTHET

Université de Toulouse ; INSA, UPS, Mines Albi, ISAE ; ICA (Institut Clément Ader); Campus Jarlard, F-81013 Albi cedex 09, France
Ecole des Mines Albi, Campus Jarlard, F-81013 Albi, France
* : Sawsane.Nakouzi@mines-albi.fr

Résumé - Une méthode récente d'élaboration des composites est la polymérisation par infrarouge. Dans cette technique, le renfort fibreux, est imprégné de résine à l'aide de la technique d'infusion de résine sous vide (en anglais Liquid resin infusion). Ce composite est placé dans un four IR, face aux lampes halogènes. Dans cette étude, les propriétés radiatives des systèmes carbone/époxy ont été déterminées expérimentalement à l'aide d'un spectromètre IR. Une première approche a été effectuée également sur le système verre/époxy. Les mesures expérimentales ont montré que le transport radiatif dans un renfort de carbone est surfacique: la pénétration des rayons infrarouge dans l'épaisseur est négligeable, d'où chaque rayon IR est absorbé par le premier pli de carbone présent à la surface du composite. Au contrario, le transfert radiatif est volumique pour le système verre/époxy. Dans cet article, on présente les simulations du processus de cuisson par infrarouge du système verre/époxy : Un logiciel développé au laboratoire nommé RAYHEAT basé sur la méthode de lancer de rayons nous permet de prédire la distribution du terme source radiatif lors de l'interaction IR avec un matériau semi transparent. Ce logiciel a été modifié afin de prendre en compte la divergence du terme source radiatif due à l'anisotropie des fibres de verre. Ce terme source est exporté vers le logiciel commercial COMSOLMULTIPHYSICSTM où l'équation de chaleur est couplée avec la cinétique de réaction de la résine. Dans des résultats présentés on a simulé la cuisson du système carbone/époxy où le transport radiatif est surfacique et nous proposerons des résultats préliminaires sur le chauffage du système verre/époxy.

Nomenclature

A paramètres des lois d'Arrhenius de la résine époxy
Cp capacité thermique massique du matériau, $J.kg^{-1}.K^{-1}$
E énergie d'activation, J. mol^{-1}
f fraction de volume libre
H_t Enthalpie totale de la réaction *J/kg*
k conductivité thermique du matériau, $W/m.K$
R constante des gaz parfaits, $J.mol^{-1}.K^{-1}$
T température, *K*

Symboles grecs
α degré d'avancement de réaction
λ longueur d'onde, μm
ρ masse volumique, kg/m^3

Indices et exposants
c composite

1. Introduction

L'amélioration des performances des composites à hautes performances passe par de nouvelles méthodes de mise en œuvre de ces matériaux. L'utilisation de l'infrarouge [1] pour la polymérisation des résines époxy couramment utilisées dans les applications aéronautiques, est une méthode de mise en œuvre qui nous permet d'assurer les performances mécaniques finales élevées du composite, dû à la flexibilité de ce mode de chauffage. Ce mode s'applique aussi au préchauffage du renfort [5]. Par contre, la prédiction de la distribution de température

au cours de cuisson par infrarouge, est très importante, la résine ayant une température de dégradation thermique. D'où la nécessité d'un logiciel de calcul nous permettant de prédire cette température en fonction du temps. Le laboratoire à l'ICA Albi a fait plusieurs recherches [7] destinées a une meilleurs compréhension de l'interaction des rayonnements IR avec les matériaux. Un logiciel nommé RAYHEAT basé sur la méthode de lancer de rayons a été développé. Ce logiciel permet de prédire la distribution du terme source radiatif dans un matériau semi-transparent et du flux radiatif surfacique dans le cas d'un matériau opaque. La validation de ce logiciel par une solution analytique de facteur de forme [13] a été présentée dans des travaux précédents.

Dans notre étude, le composite est placé dans un four infrarouge composé d'une série de lampes halogènes type fournies par la société TOSHIBA LIGHTING, ces lampes sont la bande spectrale d'émission de ces lampes est : $0.6 - 6\,\mu m$ avec $\lambda_{max} = 1.2\mu m$. L'infusion de résine à travers le renfort se fait sous vide. (figure 2)

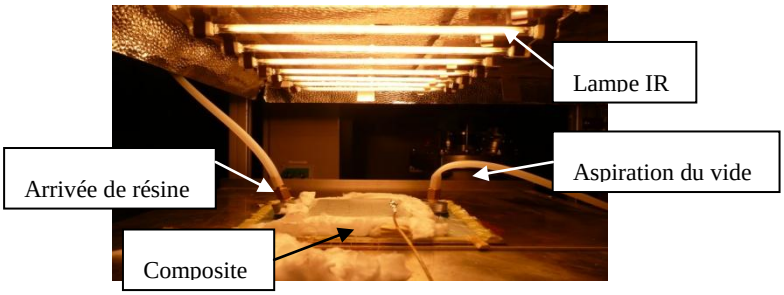

Figure 1 Four infrarouge

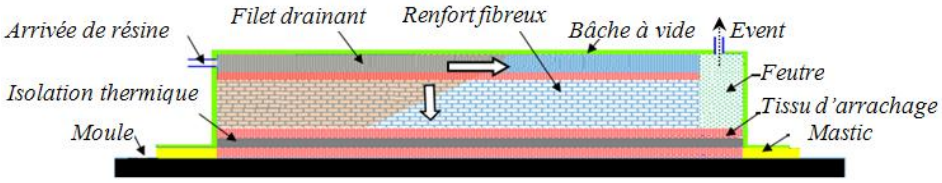

Figure 2 Présentation schématique du processus d'infusion de résine.

2. Four IR

Le four est équipé de 9 lampes halogènes TOSHIBA montées sur un panneau. Le composite est placé dans un demi-moule composé d'une plaque en aluminium et placé sur un support horizontal face aux lampes. Celles-ci ont une puissance nominale de 1000W chacune. La répartition du flux radiatif surfacique peut être contrôlée en variant les puissances affectées à chacune des lampes, à l'aide de potentiomètres. La configuration de ce four est représentée sur la figure 3.

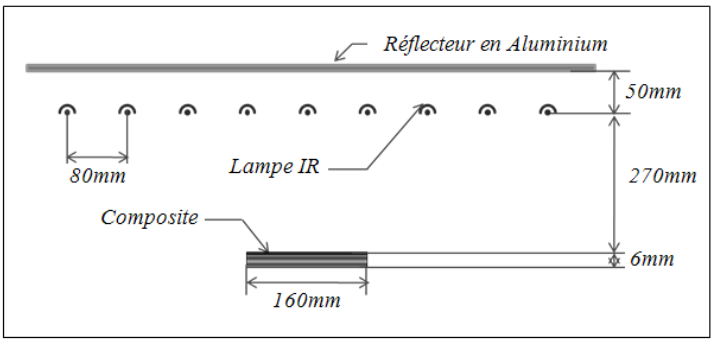

Figure 3 Présentation schématique du four infrarouge

3. Lancer de rayons

Le principe général de la méthode de lancer de rayons, consiste a simuler l'interaction des rayons émis par les lampes infrarouges et chaque élément présent dans le four (réflecteur, composite). Cette méthode est basée sur un calcul purement géométrique [7]. Pour chaque rayon, on choisi un point P sur la surface extérieure du filament tungstène (ayant une forme cylindrique) de la lampe IR. Ensuite, la direction de ce rayon est aussi choisie aléatoirement, dans le domaine de l'hémisphère formé par la normale sortante du point P. La figure 4 présente schématiquement cette méthode.

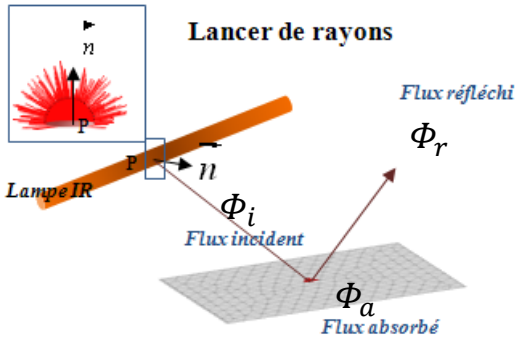

Figure 4 Présentation schématique de la méthode de lancer de rayons

3.1. Interaction rayon du rayon IR avec le composite

Des mesures des propriétés radiatives ont été réalisées afin de bien comprendre l'interaction du rayon avec le composite dans le four. Des mesures en transmission pour les couches recouvrant le composite (figure 5, 6) ont été faites pour déterminer la fraction de rayons IR absorbée par le composite. D 'autre part, le renfort en carbone est parfaitement opaque au rayonnement infrarouge, sur la figure 7 on observe les mesures en transmission pour un tissu de renfort en carbone d'épaisseur $1mm$. Ces mesures montrent que le transport radiatif à travers le renfort est surfacique, d'où les rayons IR sont absorbés par la surface du composite. D'où l'intérêt de mesurer la réflexion de la séquence des couche de film de recouvrement, tissu d'arrachage et renfort fibreux (figure 8).

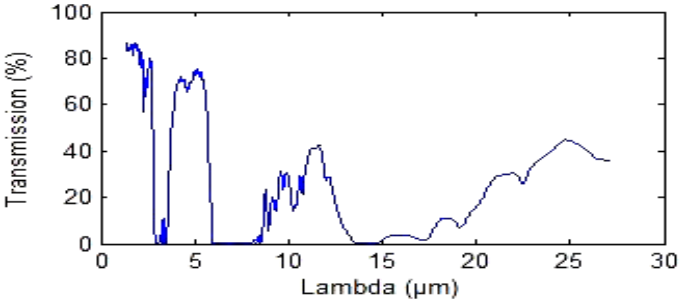

Figure 5 Transmission spectrale du film de recouvrement

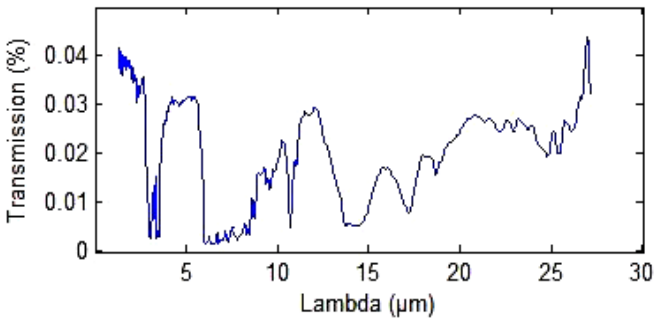

Figure 6 Transmission spectrale du tissu d'arrachage

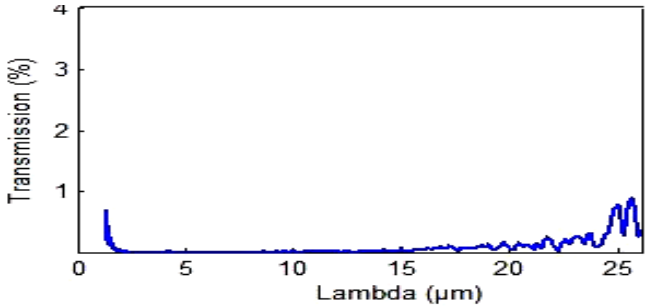

Figure 7 Transmission spectrale du tissu de renfort en carbone

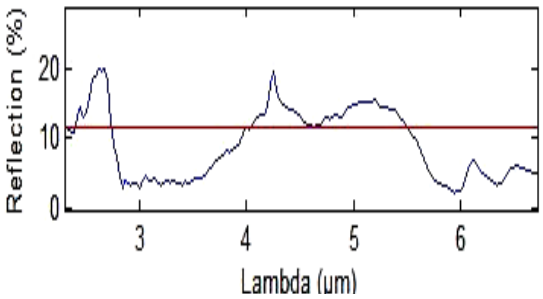

Figure 8 Réflexion spectrale de la séquence des couches (film de recouvrement, tissu d'arrachage et renfort fibreux)

4. Conditions aux limites

Le composite étant considéré comme opaque dans l'infrarouge, le rayonnement émis par les lampes est absorbé par le premier pli de carbone présent sur la surface supérieure du composite.

Par conséquent, la distribution surfacique du flux radiatif générée par *RAY-HEAT* est prise comme condition thermique aux limites sur la face supérieure du composite dans COMSOL MULTIPHYSICS. En même temps cette face est soumise à un transfert par convection naturelle dû au contact avec l'air présent dans le four. La face inférieure avec une plaque en téflon, celle ci est à son tour en contacte avec une plaque aluminium constituant le moule. La température du moule est une condition thermique aux limites. Les autres faces sont considérées adiabatiques ayant isolé thermiquement les bords du composite.

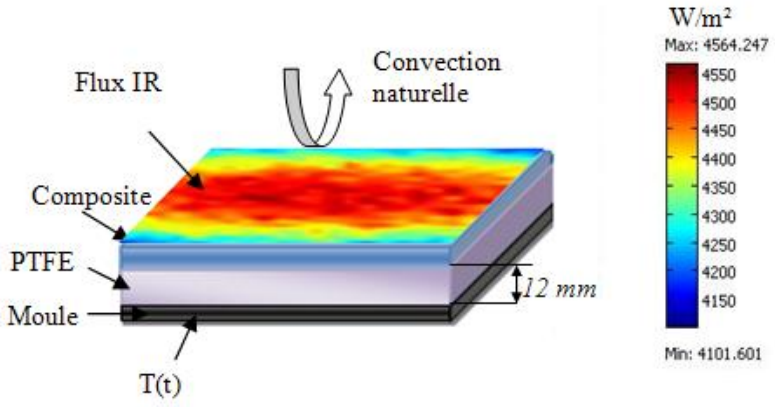

Figure 9 Conditions thermiques aux limites

5. Equation de chaleur

La prédiction spatiale et temporelle de la température et du degré de polymérisation nécessite la résolution de l'équation de la chaleur, en supposant un équilibre thermique entre le renfort fibreux et la matrice à chaque instant [14]. La répartition de notre flux radiatif n'étant pas toujours homogène, elle est liée directement à la configuration géométrique du four, d'où la résolution tridimensionnelle de l'équation de la chaleur :

$$\rho_c c_{p,c} \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla k_c \nabla T + v_m \rho_m H_t \frac{\partial \alpha}{\partial t} \qquad (1)$$

Cette équation est fortement couplée avec l'équation de la cinétique. Ce couplage dans COMSOLMULTIPHYSICS nous permet de prédire la distribution de température ainsi que le degré de réticulation dans le composite au cours de la polymérisation [14].

$$\frac{d\alpha}{dt} = \left(\frac{k_1 k_D}{k_1 + k_D} + \frac{k_2 k_D}{k_2 + k_D} \alpha^m\right)(1-\alpha)^n \qquad (2)$$

$$k_D = k_3 \exp\left(-\frac{b}{f}\right) \qquad (3)$$

$$k_i = A_i exp\,(-\frac{E_i}{RT}) \qquad i = 1,2 \qquad (4)$$

$$f = f_0 + \delta(T - T_g) \qquad (5)$$

Les propriétés cinétiques et thermo physiques du composite ont été prises dans la littérature [16]et déduites de la loi des mélanges.

6. Mesures expérimentales

Le montage expérimental consiste a mesurer la température du composite au cours de la polymérisation. Des thermocouples type k, de diamètre 80µm, sont placés dans l'épaisseur du composite à travers les couches de renfort.

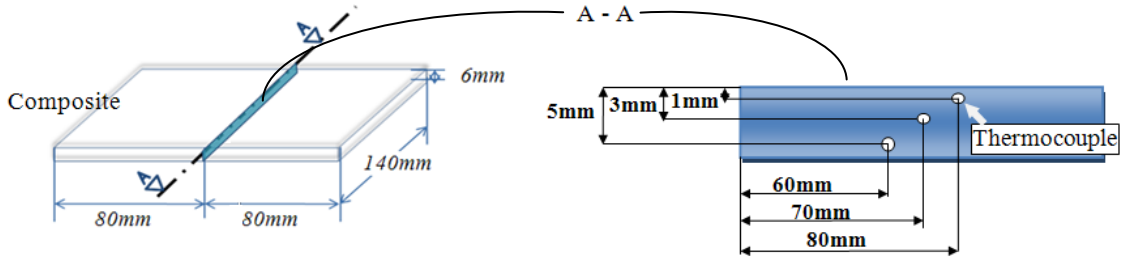

Figure 70 Positions des thermocouples selon l'épaisseur du composite

La figure 11 présente le flux radiatif reçu par la face supérieure du composite en son centre. La figure 12 présente la température de l'air en fonction du temps. Le coefficient de convection naturelle de la figure 13 a été calculé en fonction de la température de la face supérieure du composite, de la température du four et de la longueur du composite, en utilisant une équation semi empirique dans la librairie COMSOL.

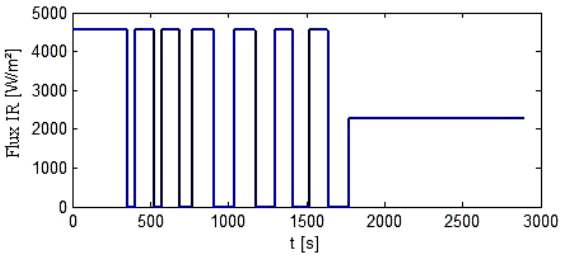

Figure 8 Flux radiatif au centre du composite

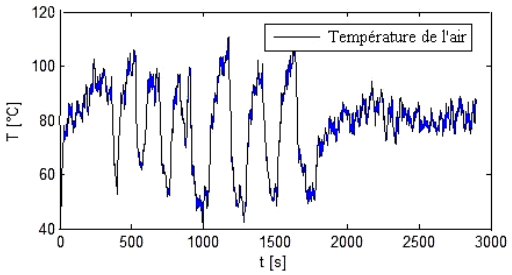

Figure 9 Température de l'air dans le four

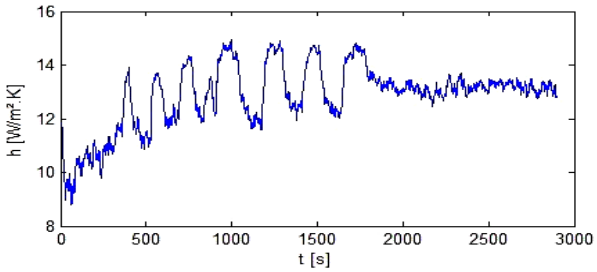

Figure 10 Coefficient de convection naturelle

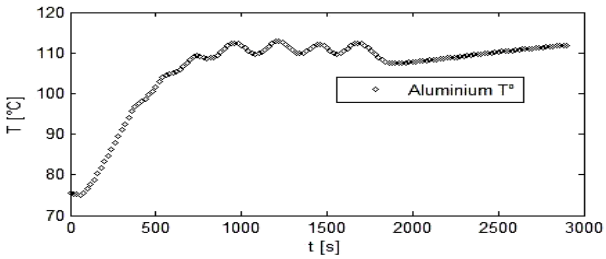

Figure 11 Température du moule en aluminium

Les figures 15, 16 et 17 présentent les comparaisons entre les résultats des simulations numériques et les résultats expérimentaux.

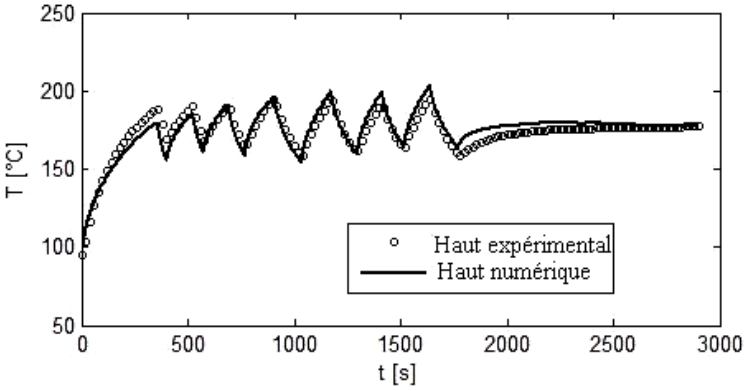

Figure 12 Validation température du TC haut

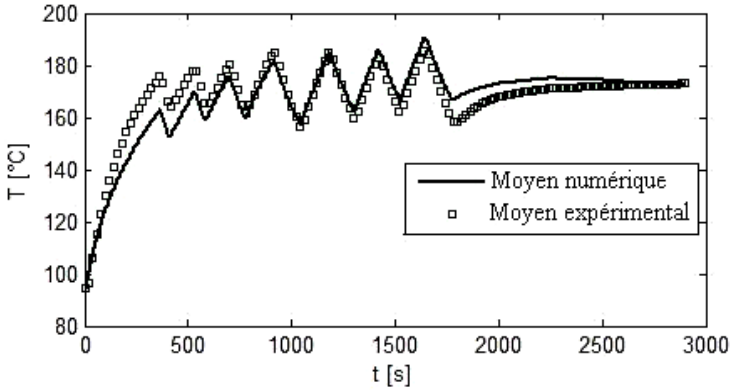

Figure 13 Validation température TC moyen

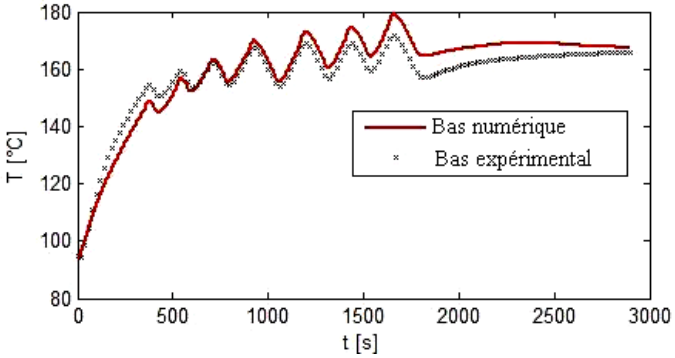

Figure 14 Validation température TC bas

L'erreur relative sur les trois thermocouples a été calculée en utilisant l'équation suivante :

$$\boldsymbol{E} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{3}\left(T_{exp}-T_{num}\right)^2}{\sum_{i=1}^{3}T_{exp}^2}} * \mathbf{100} \qquad (6)$$

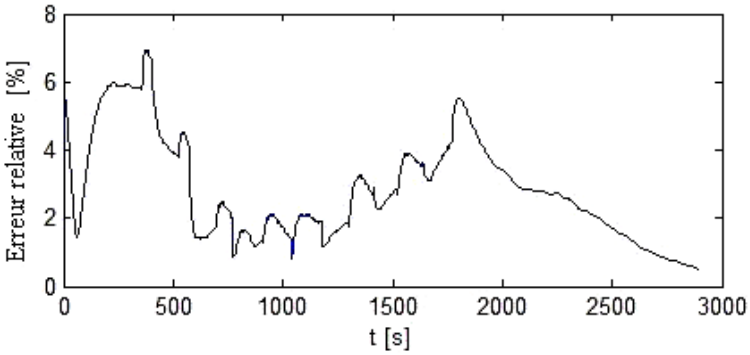

Figure 18 Erreur relative en température sur les trois thermocouples

Conclusion

Une nouvelle méthode de mise en œuvre des composite c'est la polymérisation dans un four infrarouge a été présentée dans ce papier. Le logiciel développé au laboratoire sous MATLAB, basé sur la méthode de lancer de rayons a été utilisé afin de prédire la distribution du flux radiatif à la surface du composite. Ce flux, exporté vers COMSOL a été couplé avec l'équation de chaleur et l'équation de cinétique du composite afin de déterminer la distribution de la température dans le composite. Des mesures des propriétés radiatives du composite ont été présentées. Des mesures expérimentales nous nt permis de valider le processus de cuisson du composite. Dans le futur, nous allons simuler le chauffage par infrarouge sur une géométrie industrielle.

Références

[1] B-C. Chern, T.J. Moon, J.R Howell, *Journal of Composite Materials*, 2002, 36, 1905.
[2] B-C. Chern, T.J. Moon, J.R Howell, *Journal of Composite Materials*, 2002, 36, 1935.
[3] B-C. Chern, T.J. Moon, J.R Howell, *Journal of Heat Transfer*, 1995, 117, 685.
[4] B-C. Chern, T.J. Moon, J.R Howell, *Journal of Heat Transfer* , 2003, 125, 137.
[5] S. Adanur, A. McClain and B. Xu, *Journal of Elastomers and Plastics*, 2003, 35, 257.
[6] J. E. Cunningham ,P. F. Monaghan, M. T. Brogan, *Composites Part A* , 1998, 51, 61.
[7] B. Cosson, F. Schmidt, Y. Le Maoult, M. Bordival, *International Journal of Material Forming* , 2010.
[8] M. Bordival, Y. Le Maoult, F. Schmidt, *Polymer Engineering & Science*, 2009, 49, 783.
[9] C. Champin, J. F. Agassant, M. Bellet, F.M. Schmidt, Y. Le Maoult, *20th International Conference of Polymer Processing Society June 20-24, (Akron, Ohio, USA)*, 2004.
[10] F.M. Schmidt, Y. Le Maoult, S. Monteix, *Journal of materials processing technology*, 2003,143, 225.
[11] S. Andrieu, Y. Le Maoult, F.M. Schmidt , *18th International Conference of Polymer Processing Society, (Guimarès, Portugal)*, 2002.
[12] M. Pharr, G. Humphreys, *Physically based rendering: from theory to implementation*, Elseiver science USA, 2004.
[13] H. Leuenberger, R.A. Person, *ASME Annual Meeting, New York*, 1956.
[14] T-M-H. Nguyen, *Systèmes époxy-amine incluant un catalyseur externe phénolyque: cinétique de réticulation-vieillissement hydrolytique.* Ph. D Thesis: Académie de Nice, Université du Sud Toulon, 2007. (In french).
[15] J.M. Balvers, H.E.N. Bersee, A. Beukers, K.M.B. Jansen, *Structures, Structural Dynamics, and Materials Conference, Schaumburg*, 2008.
[16] E. Ruiz and F. Trochu, *Journal of Composite Materials*, 2005, 39, 881.
[17] P.I. Panagiotis, I.K. Partridge, *Journal of Apllied Polymer Science*, 2000, 77, 1419.
[18] D. Lecointe, *Caractérisation et simulation des processus de transferts lors d'injection de résine pour le processus RTM.* Ph. D Thesis: Ecole doctorale sciences pour l'ingénieur de Nantes, 1999. (In french)

Remerciements

Nous tenons à remercier la société TOSHIBA LIGHTING pour leur support et l'intérêt qu'ils apportent à ce travail. Nous remercions aussi B. Cosson et M. Bordival pour leur contribution au développement du logiciel *RAY-HEAT*.